



**HAL**  
open science

# Microscopie Électronique en Transmission pour l'étude de phénomènes magnétiques à l'échelle du nanomètre

Aurélien Masseboeuf

► **To cite this version:**

Aurélien Masseboeuf. Microscopie Électronique en Transmission pour l'étude de phénomènes magnétiques à l'échelle du nanomètre. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2008. Français. NNT: . tel-00384346

**HAL Id: tel-00384346**

**<https://theses.hal.science/tel-00384346v1>**

Submitted on 14 May 2009

**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.

# Imagerie magnétique dans un Microscope Électronique en Transmission pour l'étude du magnétisme à l'échelle du nanomètre.

Thèse préparée au  
**CEA - Grenoble**  
Institut Nanosciences et Cryogénie

pour obtenir le grade de  
**Docteur de l'université Joseph Fourier - Grenoble I**  
spécialité **Physique Appliquée**

par  
**Aurélien Masseboeuf**

soutenue le 4 Décembre 2008 devant le jury composé de

---

<b>Joël Chevrier</b>	Professeur <i>UJF - Grenoble</i>	Président du Jury
<b>Pierre Stadelmann</b>	Professeur <i>EPFL - Lausanne</i>	Rapporteur
<b>Eric Beaurepaire</b>	Directeur de recherche <i>IPCMS - Strasbourg</i>	Rapporteur
<b>Etienne Snoeck</b>	Directeur de recherche <i>CEMES - Toulouse</i>	Examineur
<b>Pascale Bayle-Guillemaud</b>	Chercheur <i>CEA - Grenoble</i>	Responsable de Thèse
<b>Alain Marty</b>	Chercheur <i>CEA - Grenoble</i>	Directeur de Thèse



*« Et faudra pas venir pleurer  
Si on est tous en bonne santé  
Et qu'dans vot' dictocratie...  
...on y foute l'anarchie »*

LES OGRES DE BARBACK

# Les Mercis

Le premier ira à MADA, qui m'a suivi de loin scientifiquement mais de près tout le reste du temps.

Un grand merci à PASCALE, grâce à toi j'ai cherché, j'ai appris et j'ai écrit ceci.

Un merci aussi grand à ALAIN, ma nouvelle référence de sagesse scientifique.

Un merci aussi pour Messieurs BEAUREPAIRE, CHEVRIER, SNOECK et STADELMANN pour avoir pris le temps de lire ma prose et d'en proposer l'évaluation.

Un immense merci à CHRISTOPHE, qui m'a intronisé à l'intimité des salles obscures où l'on taquine l'électron.

Un merci plein d'admiration à OLIVIER avec qui la Science est aussi facile à décrire que les 4 couleurs d'un crayon Bic.

Un merci à partager entre toutes les personnes que j'ai croisées tous les jours. Une louchette pour MARTIEN et ses nombreuses maîtrises, des falaises aux langues en passant par les nanofils. Une cuillerée pour VIOLAINE qui m'a donné de nombreuses clefs pour appréhender le micro- de la microscopie. Une pincée pour JEAN-LUC et son goût de la maîtrise du code. Un gros morceau pour ARMAND et sa maîtrise du joujou. Une bonne part à ERIC pour nos travaux en chirurgie. Deux bonnes rasades à DAVE et PETER pour m'avoir fait pratiquer la microscopie selon Shakespeare. Et je prolonge mercis et recettes à CHRISTOPHE, GUILLAUME et HANAKO.

Un autre merci est à découper pour la grande famille du CEMES que je retrouverai toujours avec plaisir. Une re-merci pour ETIENNE qui m'a démontré que l'on pouvait allier vitesse, précipitation et résolution. Plus qu'un soupçon pour FLORENT et son avidité d'explication de la théorie dynamique en général et de la virtualité des photons en particulier. Une bolée pour BÉNÉ qui m'a donné très vite confiance en ce que je faisais. Et une double ration pour JACQUES, ses cils et ses tuyaux pour la manipulation du tout petit.

Un merci à ARIEL, ROBERT et PATRICK pour les grammes de philosophie qu'ils m'ont apporté aussi bien dans le marc du café que sur les problèmes éthiques de la croyance en la fusion froide.

Un merci évident à tous ceux qui ont abordé avec moi la collaboration scientifique. Quitte à n'en citer que quelques uns et à en oublier beaucoup je préfère vous dire à tous en même temps un GRAND merci.

Un merci pour JULIEN et CÉCILE parce que c'était bien, parce que c'est grâce à vous.

Et des mercis nombreux à ÉMILIE ET JU pour avoir parlé avec moi du tout et surtout de riens.

Un merci pétillant pour tous les gens passés à L'OUEST avec moi durant ces années?...!

Un merci tout simple pour KATELL, un plein de sourire pour ANNE et un ginette pour JÉRÉMIE.

Mersi RENAUD, a priori il n'y a plus qu'une faute sur ce mot-ci.

Un merrci à REM pour dire moult mercis.

Et un bouquet final pour les magnifiques géniteurs de MAÏLYS, ARWENN, NINON, MOI-MÊME et LILLY.

# Préface

*Un chapitre court, de quelques pages, écrites à la première personne, et à unique but digressif était initialement prévu dans ce manuscrit. Après concertation avec le jury de cette thèse, celui-ci est réduit à une simple préface, extraite du corps du manuscrit. Son contenu n'engage que son auteur et lui seul, et nulle personne de l'Université diffusant cette thèse, du jury l'ayant évaluée ou du laboratoire l'ayant encadrée.*

Après quelques discussions très intéressantes sur le fond même de la question posée en amont par mes quelques lignes, j'ai décidé de retirer cette partie du corps même de cette thèse. Néanmoins, le lecteur intéressé pourra trouver une version complète de ce manuscrit à l'adresse suivante :

<http://aurelien.masseboeuf.free.fr/these.pdf>

# Table des matières

Les Mercis	ii
Préface	iii
Table des Matières	iv
Liste des Figures	vi
Introduction Générale	1
<b>I Magnétisme microscopique</b>	<b>5</b>
Introduction	6
I.1 Le Magnétisme microscopique ou micromagnétisme	7
a Brève histoire du Magnétisme	7
b Décrire les forces magnétiques	9
c Une histoire d'énergie	10
d Résultats Micromagnétiques	13
I.2 Microscopies Magnétiques	16
a MFM - Magnetic Force Microscopy	16
b Sp-STM - Spin Polarized Scanning Tunneling Microscopy	18
c SHPM - Scanning Hall Probe Microscopy	19
d Scanning MOKE - Magneto-Optical Kerr Effect	21
e Bitter Microscopy	22
f X-PEEM - XMCD Photo-Emission Electron Microscopy	23
g MTXM - Magnetic Transmission X-ray Microscopy	24
h SEMPA - Scanning Electron Microscopy with Polarisation Analysis	26
i LTEM - Microscopie de Lorentz	27
Conclusion	28
<b>II Microscopie du magnétisme</b>	<b>31</b>
Introduction	32
II.1 Origine du contraste dans un MET	32
II.2 Contraste Magnétique dans un MET	36
a Description	36
b Obtention du contraste	39
c Contrastes de Fresnel	40
d Contrastes de Foucault	43
II.3 Vers des études quantitatives, la cartographie magnétique	45
a Differential Phase Contrast	45
b Résolution de l'équation de transport d'intensité	52
c Holographie électronique	57
Conclusion sur la Cartographie	62
<b>III Etude de Couches minces</b>	<b>65</b>
Introduction	66
III.1 Données Préliminaires	68

a	Caractérisation structurale . . . . .	68
b	Caractérisation magnétique . . . . .	70
c	Simulation Micromagnétique . . . . .	72
d	Conclusion . . . . .	73
III.2	Microscopie de Lorentz sur les alliages FePd . . . . .	73
a	Etude en vue plane . . . . .	74
b	Etude en vue transverse . . . . .	85
III.3	Études In-situ . . . . .	94
a	Cycle d'aimantation perpendiculaire . . . . .	95
b	Analyse Quantitative . . . . .	96
c	Rôle des Lignes de Bloch Verticales . . . . .	97
	Conclusion et Perspectives sur le FePd . . . . .	102
<b>IV</b>	<b>Etude de Nanostructures</b> . . . . .	<b>105</b>
	Introduction . . . . .	106
IV.1	Notions de degré de liberté magnétique . . . . .	107
a	Différents types d'objets magnétiques . . . . .	107
b	Transition vortex-paroi . . . . .	111
	Résumé des phénomènes . . . . .	113
IV.2	Description des objets de l'étude . . . . .	113
a	Croissance et Structure . . . . .	113
b	Etat de l'art des propriétés magnétiques des plots de Fer . . . . .	115
c	Plots de Cobalt . . . . .	119
	Conclusion . . . . .	119
IV.3	Microscopie de Lorentz sur les Nanostructures . . . . .	119
a	Méthodes utilisées . . . . .	120
b	Etude du retournement d'un domaine de fermeture de Néel . . . . .	124
c	États Double-Landau bistables . . . . .	129
d	Transition Vortex-Paroi . . . . .	132
e	Vers le contrôle de la chiralité . . . . .	133
f	Perspectives . . . . .	137
	Conclusions . . . . .	137
	<b>Conclusion Générale</b> . . . . .	<b>139</b>
	<b>Annexes</b> . . . . .	<b>143</b>
A	Définition de quelques constantes très utiles en LTEM . . . . .	144
B	Calcul du Déphasage dû au Potentiel Interne . . . . .	145
C	Cartographie d'épaisseur . . . . .	148
D	Calibrations des Tilt du JEOL 3010 . . . . .	149
E	Le Scattergram . . . . .	150
F	Correction automatique des images . . . . .	152
G	Problèmes de simulation en LTEM . . . . .	156
H	Intérêt d'une approche multislice en LTEM . . . . .	158
I	Holographie "In-Line" . . . . .	159
J	Aimantation planaire sur vue transverse de FePd . . . . .	161
K	Expériences de STXM . . . . .	163
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	<b>166</b>
	<b>Glossaire</b> . . . . .	<b>176</b>



# Liste des Figures

I.1	Extrait du Mémoire de A.M. Ampère . . . . .	7
I.2	Expérience d'Oersted . . . . .	8
I.3	Echelle métrique du magnétisme . . . . .	9
I.4	Energie Zeeman . . . . .	11
I.5	Energie d'échange . . . . .	11
I.6	Energie Dipolaire . . . . .	12
I.7	Energie Magnéto-Cristalline . . . . .	12
I.8	Simulation Micromagnétique par GL-FFT 2D . . . . .	14
I.9	Simulation Micromagnétique par GL-FFT 3D . . . . .	14
I.10	Simulation magnétique par méthode multi-échelles . . . . .	15
I.11	Magnetic Force Microscopy . . . . .	17
I.12	Spin Polarized Scanning Tunnel Microscopy . . . . .	19
I.13	Scanning Hall Probe Microscopy . . . . .	20
I.14	Surface Magnetic Optical Kerr Effect . . . . .	21
I.15	Bitter microscopy . . . . .	22
I.16	X-Ray Circular Dichroism Photo-emission Electron Microscopy . . . . .	24
I.17	Magnetic Transmission X-ray Microscopy . . . . .	25
I.18	Scanning Electron Microscopy with Polarization Analysis . . . . .	26
II.1	Lentille electromagnétique . . . . .	34
II.2	Aberrations Géométriques . . . . .	35
II.3	Action de la force de Lorentz sur l'onde électronique . . . . .	37
II.4	Echantillon utilisé pour la simulation de clichés en LTEM . . . . .	39
II.5	Schéma de principe des Contrastes de Fresnel . . . . .	40
II.6	Résultats de simulation sur les contrastes de Fresnel . . . . .	42
II.7	Schéma de principe des Contrastes de Foucault . . . . .	43
II.8	Résultats de la simulation pour les contrastes de Foucault . . . . .	44
II.9	Schéma de principe d'une acquisition en DPC . . . . .	46
II.10	Cartographie DPC d'un champ rayonné par une pointe MFM . . . . .	47
II.11	Principe de la Quantification des images en DPC . . . . .	48
II.12	Résultats de la simulation pour une acquisition DPC . . . . .	49
II.13	Comparaison de plusieurs acquisitions DPC selon le nombre d'images utilisées . . . . .	50
II.14	Copie d'écran de la correction manuelle des images pour le TIE . . . . .	54
II.15	Résultats de la simulation pour une acquisition TIE . . . . .	55
II.16	Comparaison de résultats de reconstruction TIE pour plusieurs défocalisations utilisées . . . . .	56
II.17	Schéma de principe de l'Holographie électronique . . . . .	58
II.18	Résultats de la simulation pour une acquisition en Holographie Electronique . . . . .	60
II.19	Comparaison des résultats de simulation d'holographie pour différentes tailles de masque et d'interfrange . . . . .	61
II.20	Comparaison de la reconstruction de phase pour les 3 techniques . . . . .	62
III.1	Cliché TEM d'un bit de donnée dans un de disque dur . . . . .	66
III.2	Schéma de principe de l'enregistrement perpendiculaire . . . . .	67
III.3	Structure L1 <sub>0</sub> . . . . .	68
III.4	Microscopie HRTEM sur FePd . . . . .	69
III.5	Microscopie HRTEM sur des Parois d'antiphase dans FePd . . . . .	69
III.6	Microscopie HRTEM sur des micromacles dans FePd . . . . .	70
III.7	Cycles d'Hysteresis et microscopie MFM sur FePd . . . . .	72
III.8	Simulation micromagnétique par GL-FFT de l'échantillon de FePd étudié . . . . .	73
III.9	Simulation d'un cliché de LTEM-Fresnel sur les parois de domaines dans FePd . . . . .	75
III.10	Cliché LTEM expérimental sur FePd . . . . .	76
III.11	Etude de la largeur de paroi à partir de clichés de Fresnel dans FePd . . . . .	77
III.12	Etude de l'influence du tilt sur les contrastes de Fresnel . . . . .	78
III.13	Cartographies DPC en mode STEM et TEM sur le FePd . . . . .	79
III.14	Schéma de Principe de la formation du déphasage dans nos échantillons . . . . .	82
III.15	Etude TIE sur FePd en vue plane . . . . .	83
III.16	Cartographie couleur de l'induction magnétique sur FePd en vue Plane . . . . .	84

III.17	Présentation de la vue en Cross sur FePd, clichés de Fresnel et de Foucault	86
III.18	Etude par DPC de la vue en Cross de FePd	87
III.19	Etude par la TIE de la vue en Cross de FePd	88
III.20	Holographie électronique sur les champs de fuite de FePd	89
III.21	Principe de la récupération des données purement magnétique en Holographie électronique	90
III.22	Résultat d'Holographie sur la vue en Cross de FePd	91
III.23	Profil d'épaisseur de la lame mince déterminée par Holographie	92
III.24	Cartographie Magnétique de la lame mince déterminée par Holographie	92
III.25	Comparaison du déphasage déterminé par Holographie et de la simulation avec GL-FFT	93
III.26	Courbe de calibration du champ magnétique produit dans l'entrefer de la pièce polaire du microscope	94
III.27	Demi-cycle d'hystérésis décrit sur FePd	96
III.28	Analyse Quatitative des clichés de Fresnel lors du Cycle d'Hystérésis	97
III.29	Cartographie magnétiques lors du demi-cycle d'hystérésis	98
III.30	Schéma de principe des deux types de lignes de Bloch verticales décrites dans la littérature	99
III.31	Simulation multi-échelle d'une ligne de Bloch Verticale dans FePd	100
III.32	Comparaison entre l'expérience et la simulation pour des bulles magnétiques	100
IV.1	Schéma de principe de l'état de vortex magnétique	107
IV.2	Schéma de principe de différents types de paroi magnétiques	109
IV.3	Etude par simulation de la stabilité énergétique des parois de Bloch et Néel asymétrique	110
IV.4	Etude par simulation de la transition Vortex - Paroi magnétique	112
IV.5	Cliché AFM et MEB des plots de Fer auto-assemblés	113
IV.6	Clichés HRTEM des plots de Fer	114
IV.7	Cliché AFM des plots de Cobalt auto-assemblés	115
IV.8	Simulation micromagnétique 3D avec GL-FFT d'un plot de Fer auto-assemblé	115
IV.9	Retournement de domaine de fermeture de Néel étudié par simulation micromagnétique	116
IV.10	Etude MFM des plots de Fer auto-assemblés	117
IV.11	Etude X-PEEM des plots de Fer	118
IV.12	Etude du retournement du domaine de fermeture de Néel par X-PEEM	118
IV.13	Etude MFM des plots de Cobalt	119
IV.14	Préparation des vueplanes par FIB	120
IV.15	Simulation de clichés de Fresnel	121
IV.16	Cartographie obtenue par DPC	122
IV.17	Cartographie obtenue par TIE sur les plots de Fer dans différentes configurations	123
IV.18	Comparaison entre les cartographies obtenue sur les plots de Fer par DPC et TIE	124
IV.19	Etude du renversement de domaine de fermeture de Néel sur les contrastes de Fresnel	126
IV.20	Simulation d'une forte défocalisation sur les contrastes de Fresnel d'un plot de Fer	127
IV.21	Observation directe du renversement de domaine de fermeture de Néel par la propagation du vortex de surface	128
IV.22	Réponse d'une structure double Landau à l'application d'un champ transverse	129
IV.23	Hystérèse décrite par deux configuration énergétiquement identiques	130
IV.24	Evolution de la largeur de l'hystérèse en fonction du tilt	131
IV.25	Etat bistable obtenue pour une largeur d'hystérèse nulle	132
IV.26	Etude de la transition Vortex paroi sur un plot de Fer	133
IV.27	Reconstruction par la TIE de plots de Cobalt	134
IV.28	Schéma de principe de la chiralité d'un état vortex dans un plot de Cobalt	135
IV.29	Sélection de chiralité de l'état vortex d'un plot de Cobalt	136
B-1	Facteur de Structure du Fer déterminé par JEMS	146
D-2	Calibration des tilts du JELO 3010	149
E-3	Schéma de Présentation du Scattergram	151
F-4	Corrections à apporter	152
F-5	Correction par cross-corrélation	153
F-6	Coordonnées Log-Polaires	154
F-7	Ré-échantillonnage 1 pour le passage en coordonnées Log-Polaires	155
F-8	J'aurais pas cru que quelqu'un lirait cette table jusque là...	155
F-9	Ré-échantillonnage 3 pour le passage en coordonnées Log-Polaires	155
G-10	Formation de l'image dans le microscope	156
G-11	Simulation de clichés en LTEM avec et sans l'approximation de la fonction enveloppe	157
H-12	Comparaison de la Méthode Aharonov-Bohm et Multislice	158
I-13	Holographie In-Line par Simulation	159
J-14	Aimantation FePd en vue Cross	161
K-15	Principe de l'expérience STXM	163
K-16	Résultats de l'expérience STXM	164

*« Une civilisation sans la science  
c'est aussi absurde qu'un poisson  
sans bicyclette... »<sup>1</sup>*

# Introduction

Que ce soit avec les nombreuses applications qu'ils génèrent dans notre vie quotidienne ou avec la fascination qu'ils peuvent exercer sur le grand public (citons par exemple, l'image de la lévitation des supraconducteurs), la publicité des matériaux magnétiques n'est plus à faire. La désignation d'Albert Fert pour le prix Nobel en 2007 n'a certainement pas tari cette source de bienveillance à l'encontre de leur développement.

Sur le plan strictement scientifique, ces matériaux exercent un pouvoir attractif encore plus important peut-être. Les nombreux défis qu'ils proposent aux scientifiques jaugent à eux seuls de l'étendue de la connaissance acquise et en devenir dans ce domaine. L'observation de l'effet Spin-Torque ou l'isolation de quantum magnétiques dans des boîtes quantiques sont aujourd'hui des objectifs qui monopolisent l'énergie de nombreux laboratoires.

Ces défis sont associés à la dynamique de miniaturisation qui galvanise l'industrie depuis l'essor des nanotechnologies. L'aspect fondamental de ces recherches s'oriente donc naturellement vers l'observation à une échelle toujours plus petite. On cherche par exemple à déterminer la structure fine d'une paroi magnétique plutôt que de simplement sonder sa présence. Le but est ainsi de contrôler l'état d'objets purement magnétiques plutôt que celui, plus global, de la structure qui le contient.

Cette obsession du nanomètre apporte deux questions à la communauté scientifique : A-t-on réellement des instruments assez puissants pour sonder encore et toujours plus précisément ces phénomènes ? Ces phénomènes existent-ils encore à cette échelle ?

On sait par exemple que la structure des parois magnétiques est radicalement différente selon qu'on la considère dans un film mince plutôt que dans un volume uniforme. En outre, la mécanique quantique nous a appris qu'à ces échelles la mesure modifie l'état de l'objet étudié. Ce sont ces raisons qui amènent les chercheurs à repousser toujours plus loin la limite de détection des instruments, en simulant par exemple la modification apportée par la mesure pour interpréter les résultats obtenus.

Ce manuscrit se situe pour deux raisons à la rencontre de ces questions.

La première raison est due à une situation géographique. Le Polygone scientifique de Grenoble est un lieu permettant à différentes communautés scientifiques de se croiser. Ces rencontres permettent de mêler compréhension des phénomènes physiques et outils de pointe pour les caractériser. La présence significative de la communauté du magnétisme scientifique en ces lieux a été initiée par Louis Néel dans les années 50. Le développement des activités durant les dernières décennies a abouti à une séparation (inhérente au développement de la connaissance) : des experts de l'instrumentation d'un côté et des laboratoires renommés pour leur connaissance de la physique fondamentale de l'autre.

L'autre raison d'être de ce manuscrit est une rencontre scientifique ; la collaboration de deux chercheurs aux objectifs complémentaires. Pascale Bayle-Guillemaud a permis au Laboratoire d'Etude des Matériaux et des Microscopies Avancées de se doter de l'un des microscopes électroniques à Transmission (MET) les plus puissants sur le plan mondial. Alain Marty possède une maîtrise des phénomènes de nanostructuration des matériaux magnétiques au laboratoire de Nanostructures et Magnétisme. Leur rencontre a donné naissance à de nombreux travaux sur la structure des systèmes magnétiques et à une compétence commune dans la relation entre l'image et les propriétés magnétiques.

La terre était a priori féconde. Ne manquait alors qu'une occasion pour faire se rencontrer un outil unique pour l'étude magnétique à l'échelle du nanomètre, et une large gamme d'objets magnétiques ne demandant qu'à dévoiler leur configuration. Cette thèse est le fruit de ces rencontres.

Elle marque ainsi un nouveau départ pour l'imagerie magnétique dans un MET à Grenoble. Pourtant, cette technique connue sous le terme de Microscopie de Lorentz est ancienne. Les premières observations de configurations magnétiques dans un MET ont été rapportées avant les années 60<sup>2</sup> et l'article de référence sur le sujet date du début des années 80<sup>3</sup> (j'ai aussi pu trouver au laboratoire, dans le fond d'un carton, de sublimes clichés de Lorentz réalisés par Dick Wade dans les années 70). Elle n'a finalement pris son essor qu'avec l'arrivée de techniques d'imageries quantitatives et non plus uniquement descriptives. Ces développements sont apparus régulièrement au cours des trente dernières années. La technique de Differential Phase Contrast est apparue à la fin des années 70, l'Holographie Electronique de champs magnétiques durant la fin des années 80, et la résolution de l'équation de Transport d'Intensité a moins de 10 ans.

Ce manuscrit propose de comparer entre eux, et de manière objective, les divers modes offerts par la Microscopie de Lorentz. Cette comparaison est réalisée à la lumière des autres techniques utilisées couramment pour imager des distributions magnétiques.

La microscopie électronique à transmission a permis, depuis de nombreuses années, de caractériser la structure cristalline des matériaux magnétiques. D'autres techniques d'imagerie MET se sont développées en parallèle pour révéler non plus l'agencement de la matière mais les flux magnétiques qui y règnent. Des études ont ainsi mis en évidence les champs magnétiques produits par des bactéries, des supraconducteurs, ou encore par la pointe d'un microscope à champ proche. Un des atouts majeurs de ces observations est d'offrir une résolution nanométrique alliée à la quantification de l'induction magnétique sondée.

Il faut noter que ces spécificités, déjà uniques pour un outil de caractérisation magnétique, peuvent de plus s'envisager dans des études dynamiques. Les MET offrent en effet une large gamme d'expériences in-situ. De l'application de champs magnétiques, à l'étude aux basses températures, en passant par l'injection de courants électriques, tout un panel d'expériences permet d'observer l'évolution d'une structure magnétique soumise à une contrainte extérieure.

Alors que les principales limitations de la résolution spatiale sont dues aux aberrations optiques, l'apparition de systèmes corrigés pour l'imagerie magnétique ferait de la microscopie électronique un outil de choix pour aller sonder des configurations magnétiques toujours plus petites.

Après avoir replacé le magnétisme à l'échelle nanométrique et étudié les nombreuses voies utilisées traditionnellement pour l'imager (Chap. I), nous allons explorer les divers modes de la Microscopie de Lorentz (Chap. II). Cette étude a pour but de replacer dans un même contexte le potentiel de ces différentes méthodes. Une première approche par la simulation permettra ainsi de les comparer sur un système modèle du micromagnétisme. L'approche de la simulation a permis notamment d'effectuer cette comparaison pour un cas idéal, sans contraintes expérimentales. Nous verrons par la suite que cette comparaison est très difficile à réaliser expérimentalement tant le champ d'application de chacune d'elles peut être restrictif. Ainsi, plutôt que de les comparer, nous montrerons qu'elles sont parfaitement complémentaires.

Nous nous attacherons ensuite à démontrer la puissance de ces techniques par l'observation de matériaux magnétiques originaux. Deux catégories distinguent les deux chapitres suivants : les films minces et les nanostructures. Cette mise en forme vient de la question posée en amont : les nanostructures conservent-elles les propriétés magnétiques qu'ont les couches minces ?

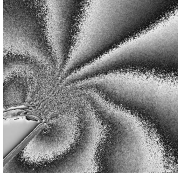
Les films minces que nous avons étudiés (Chap. III) sont dédiés à l'enregistrement haute densité perpendiculaire. L'apport de la microscopie électronique est la sensibilité à l'intégralité du volume magnétique des couches, rendant compte des différentes composantes magnétiques à l'intérieur de ces films. Une fois effectuée, cette caractérisation sera complétée par une étude in-situ avec l'application d'un champ magnétique.

La deuxième partie de ces résultats concerne l'étude de nanostructures (Chap. IV). Les propriétés remarquables de ces systèmes viennent tout d'abord de leur taille, quasi-micrométrique. C'est en fait

la structure des objets magnétiques (vortex et parois) qu'ils contiennent qui nous intéresse ici. L'un des principaux enjeux est le contrôle de leurs différents degrés de liberté. Des expériences récentes ont par exemple montré comment il était possible de contrôler, par l'application d'un champ magnétique, la composante d'aimantation perpendiculaire prenant naissance au coeur d'un vortex. Du fait de leur taille, les systèmes que nous avons étudiés ont une structure magnétique plus complexe qu'un simple vortex. Nous nous attacherons donc à décrire les différents paramètres contrôlables dans nos nanostructures. Nous présenterons alors comment il est possible de maîtriser les divers états des objets magnétiques qu'elles contiennent.

De nombreux autres systèmes ont fait l'objet d'une étude par Microscopie de Lorentz à l'occasion de nombreuses collaborations durant cette thèse : semiconducteurs magnétiques, nanofils ou encore nanoparticules. Les études réalisées sur ces structures n'ont pas encore délivré tous leur résultats. Nous ne les aborderons donc pas dans ce manuscrit.

*« Car c'est seulement de la science  
que peut jaillir la lumière.  
Cela nous le savons,  
et pas seulement de Marseille. »<sup>1</sup>*



## Chapitre Premier

# Magnétisme à l'échelle microscopique : Le Micro-magnétisme

### Sommaire

Introduction . . . . .	6
I.1 Le Magnétisme microscopique ou micromagnétisme . . . . .	7
a Brève histoire du Magnétisme . . . . .	7
b Décrire les forces magnétiques . . . . .	9
c Une histoire d'énergie . . . . .	10
d Résultats Micromagnétiques . . . . .	13
I.2 Microscopies Magnétiques . . . . .	16
a MFM - Magnetic Force Microscopy . . . . .	16
b Sp-STM - Spin Polarized Scanning Tunneling Microscopy . .	18
c SHPM - Scanning Hall Probe Microscopy . . . . .	19
d Scanning MOKE - Magneto-Optical Kerr Effect . . . . .	21
e Bitter Microscopy . . . . .	22
f X-PEEM - XMCD Photo-Emission Electron Microscopy . .	23
g MTXM - Magnetic Transmission X-ray Microscopy . . . . .	24
h SEMPA - Scanning Electron Microscopy with Polarisation Analysis . . . . .	26
i LTEM - Microscopie de Lorentz . . . . .	27
Conclusion . . . . .	28



## Introduction

Les propriétés magnétiques de la matière peuvent être déterminées par différents types de mesure. L'aimantation d'un échantillon est ainsi déterminée par magnétométrie. Les magnétomètres permettent de mesurer cette aimantation en observant la modification de l'oscillation d'un matériau au sein d'un aimant (VSM - Vibrating Sample Magnetometer) ou le courant qu'il produit quand il est situé entre deux supraconducteurs (jonction Josephson dans un SQUID - Superconducting Quantum Interference Device). Il est alors possible de mesurer son cycle d'hystérésis\* mais aussi de déterminer sa température de Curie (température au-dessus de laquelle il perd ses propriétés magnétiques).

Des mesures par Effet Kerr Polaire ou par Effet Hall apportent quant à elles des informations sur l'anisotropie magnétique du matériau ou sur son champ coercitif\*.

L'analyse de la diffraction des électrons et la spectroscopie Mossbauer donnent accès aux paramètres cristallins du matériau, tandis que la mesure dichroïque de rayons X polarisés relie l'aimantation à la nature chimique du matériau.

Toutes ces méthodes apportent des données magnétiques quantitatives. Mais l'information est globale, intégrant généralement plusieurs contributions différentes pour obtenir un signal. La configuration magnétique dans et autour du matériau n'est pas accessible et est supposée connue (on peut dans ce cas la quantifier).

L'imagerie magnétique est une approche bidimensionnelle de l'information. Une information magnétique comme l'une de celles présentées ci-dessus est ainsi sondée en plusieurs points d'un objet, pour reconstituer une image. Chaque pixel (point de l'image) représente alors l'information magnétique issue d'un endroit précis de l'échantillon.

Dans le cas de l'imagerie par effet Kerr, la mesure de la direction de l'aimantation peut être obtenue en différents points de la surface pour remonter à une cartographie de l'intensité du champ magnétique pour cette direction donnée.

L'imagerie par Résonance Magnétique (IRM) utilise la précession des moments magnétique des noyaux atomiques soumis à l'action couplée de deux champ magnétiques (statique et hyperfréquence). On peut alors déterminer la position de ces noyaux et obtenir une cartographie précise de leur distribution.

Ce chapitre introduit le magnétisme aux échelles du nanomètre. À cette échelle, une description non linéaire permet de calculer l'énergie associée à un état magnétique et d'en déterminer son évolution : c'est le *micromagnétisme*<sup>4</sup>. L'accent sera mis particulièrement sur les concepts de domaines et de parois magnétiques. C'est l'analyse de ces objets qui permet d'obtenir une image de la distribution magnétique dans un matériau.

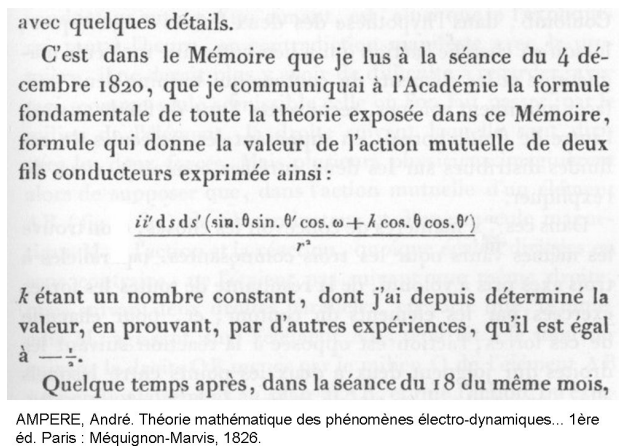
Nous analyserons ensuite les principales méthodes utilisées pour l'imagerie magnétique. Ces différentes techniques seront comparées suivant différents critères. L'imagerie magnétique dans un MET ne sera ici qu'abordée et décrite en détails au chapitre suivant.

\*Voir aussi Glossaire : [Hystérésis](#)

## I.1 Le Magnétisme microscopique ou micromagnétisme

### a Brève histoire du Magnétisme

C'est au  $XIX^{eme}$  siècle que Ampère (1775-1836) propose l'idée que les forces magnétiques peuvent être analysées comme il est fait pour la matière : si on peut la subdiviser en atomes, alors les forces issues d'un morceau de magnétite peuvent être subdivisées en un nombre fini d'aimants élémentaires. Ces aimants élémentaires auraient "une mobilité dépendant du matériau" et "se déplaceraient sous la forme d'un *courant moléculaire* produisant le champ magnétique". Ampère faisait d'ores et déjà l'analogie avec le déplacement de charges dans un conducteur produisant un courant électrique ; pourtant, la notion même d'électron ne sera découverte que plusieurs décennies plus tard. Il formule alors une équation quantifiant l'interaction entre deux "morceaux" de courant électrique : l'interaction magnétique (cf. Fig. I.1).



**FIG. I.1:** Extrait du Mémoire d'André-Marie Ampère sur les phénomènes électrodynamiques, et sa théorie "déduite de l'expérience".

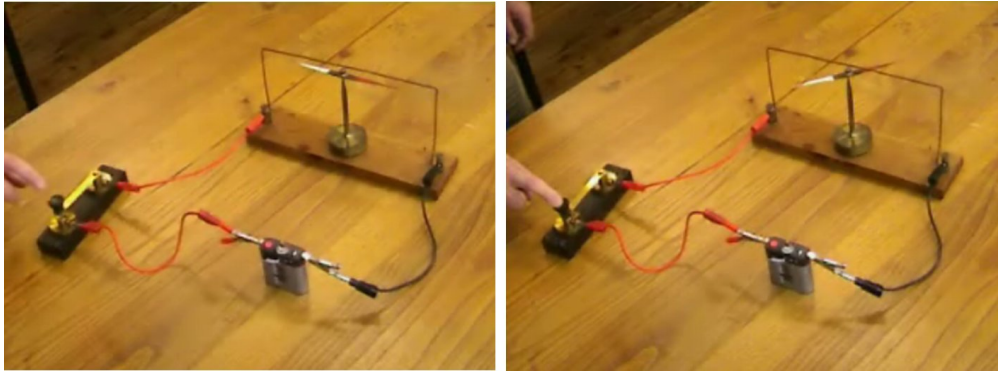
Cette formulation simple, calculant l'action mutuelle de deux fils de cuivre où passe un courant électrique, pose les fondations du magnétisme. Elle fera dire plus tard à Maxwell qu'Ampère était le "Newton de l'électricité". A partir d'observations simples, voire d'expériences imaginaires, Ampère a réussi à développer une théorie unificatrice de ses observations macroscopiques. La démonstration (détaillée en Fig. I.2) de l'existence de tels champs magnétiques avait été réalisée auparavant par Oersted (1777-1851).

Ce n'est qu'au début du siècle suivant, en 1905, que Paul Langevin (1872-1946), remet au goût du jour la théorie d'Ampère sur des aimants "moléculaires" indépendants les uns des autres. Le terme d'*électromagnétisme* a alors fait son apparition, après la publication des équations de Maxwell (1831-1879), codifiant par l'algèbre la relation entre électricité et magnétisme (cet algèbre est d'ailleurs précurseur d'une théorie qui sera plus tard développée pour la relativité restreinte). Langevin va introduire la notion de paramagnétisme pour expliquer l'alignement des aimants le long du champ magnétique (*para-* signifiant : le long de).

Cette théorie, issue de la thermodynamique, explique que le concept d'aimants élémentaires indépendants ne peut expliquer le magnétisme "fort" de certains matériaux. L'interaction entre ces aimants élémentaires est donc de nature différente selon les matériaux magnétiques, dénommés désormais, matériaux paramagnétiques (par opposition aux diamagnétiques, présentant une susceptibilité magnétique\* négative).

Poussant le rapprochement de la thermodynamique et du magnétisme, Pierre Weiss (1865-1940) va

\*Voir aussi Glossaire : [Permeabilité Magnétique](#)



**FIG. I.2:** Images tirées d'un film montrant la mise en pratique de l'expérience d'Oersted. Sur la première image, le circuit est ouvert, aucun courant ne circule, la boussole est alignée avec le fil de cuivre, selon l'axe Nord-Sud. Sur l'image de droite, on fait passer un courant dans le fil de cuivre, le champ magnétique généré par ce courant dévie la boussole de son axe Nord-Sud. (tiré de <http://ampere.cnrs.fr>)

s'inspirer de la formulation de Van Der Waals sur le comportement des gaz et analyser de façon statistique la distribution de ces "aimants moléculaires" à la manière du comportement des particules dans un gaz. L'interaction magnétique entre aimants élémentaires est alors définie par un "champ moléculaire". Weiss va ainsi réaliser une succession d'expériences ayant pour but de retrouver des températures de Curie ( $T_C$ ) expérimentales en ajustant la force de ce champ moléculaire.

Les valeurs de champ moléculaire qu'il détermine sont très grandes : l'état d'aimant permanent, qu'il associe à un équilibre thermodynamique, n'évolue quasiment plus avec l'application d'un champ, même très important. Cette observation le conforte dans l'idée qu'un matériau paramagnétique puisse être spontanément "saturé" (en état d'aimant permanent).

Comme de plus, un postulat de sa théorie est que ce champ moléculaire doit être dans la même direction que l'état d'aimantation, le seul paramètre déterminable de façon sûre est l'intensité de l'aimantation dans le matériau. Elle sera donc constante en tout point, sa direction étant libre :  $M(\vec{r}, T) = M_s \cdot m(\vec{r}, T)$ . Pour une température  $T$  donnée, l'aimantation est alors définie par une constante  $M_s$ , l'aimantation à saturation, et un vecteur unitaire définissant sa direction.

Sans proposer directement un formalisme de domaine magnétique, Weiss propose l'existence de "parties" du matériau où l'aimantation est dirigée dans un sens, et d'autres "parties" où l'aimantation peut être dans une direction différente. Il explique ainsi par ces "parties", l'existence dans un morceau de Fer de différents vecteurs d'aimantation s'annulant les uns les autres et donnant alors une aimantation résultante nulle. Une nouvelle classe de matériaux existe donc au sein du paramagnétisme : les ferromagnétiques.

Il est très important de noter ici l'approche énergétique (la nature tend à minimiser l'énergie mise en jeu pour trouver son état d'équilibre) que Weiss a utilisée et qui fonde la théorie micro-magnétique actuelle.

Heinrich Barkhausen (1881-1956) formulera le premier le terme de **domaine magnétique** en observant que les processus d'aimantation dans un ferromagnétique sont discontinus et s'opèrent par petits sauts. Son idée est que ces sauts sont en fait les différents retournements soudains de ces domaines magnétiques, intervenant à différentes étapes de l'aimantation.

Langmuir (1881-1957) développera ensuite l'idée de ce retournement pour définir le concept de **paroi magnétique**. La paroi magnétique est une frontière entre deux domaines magnétiques d'aimantation différente, elle se propage dans un domaine pour le retourner suivant l'aimantation de l'autre. Les études de Bloch (1905-1983) donneront les premières mesures de la largeur de ces parois.

	SI	CGS	Conversion SI $\Rightarrow$ CGS
Champ $\vec{H}$	A.m <sup>-1</sup>	Oersted	1 A.m <sup>-1</sup> $\Rightarrow$ 4 $\pi$ · 10 <sup>-3</sup> Oe
Aimantation $\vec{M}$	A.m <sup>-1</sup>	emu.cm <sup>3</sup>	1 A.m <sup>-1</sup> $\Rightarrow$ 10 <sup>-3</sup> emu.cm <sup>-3</sup>
Induction $\vec{B}$	Tesla	Gauss	1 T $\Rightarrow$ 10 <sup>4</sup> Gs

**TAB. I.1:** Comparaison entre unités SI et CGS (*emu* signifie electromagnetic unit)

## b Décrire les forces magnétiques

Il existe encore deux systèmes d'unités pour décrire les grandeurs du magnétisme : le Système International (système SI) et le système *CGS* (pour Centimeter-Gramm-Second). Les unités utilisées dans le système CGS rappellent les noms des scientifiques dont nous avons parlé à la section précédente. Les unités SI sont basées sur une approche à "source de courant". Par contre, le système CGS décrit ces grandeurs par des pôles magnétiques (fictifs). Ces deux approches induisent une relation différente entre les 3 grandeurs du magnétisme.

- $\vec{H}$  définit un *champ magnétique*
- $\vec{M}$  définit l'*aimantation* régnant dans un matériau
- $\vec{B}$  définit l'*induction magnétique* qui englobe les notions d'aimantation et de champ magnétique (cf. Eq I.1)

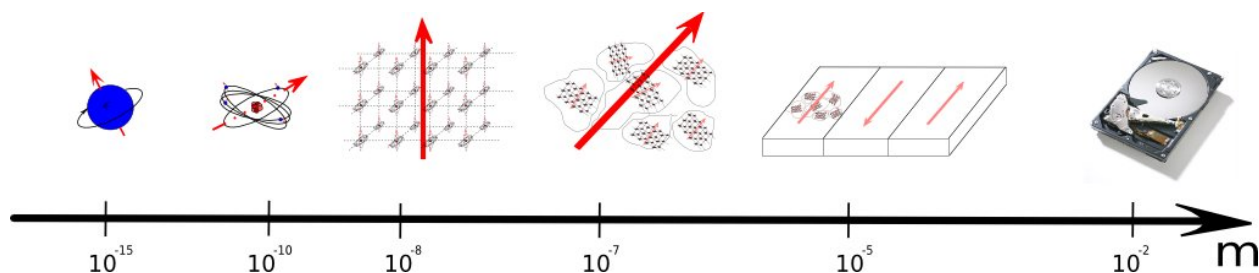
La formule qui les relie s'exprime différemment dans les deux systèmes d'unités :

$$\begin{aligned} \vec{B} &= \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}) \quad (SI) \\ \vec{B} &= \vec{H} + 4\pi\vec{M} \quad (CGS) \end{aligned} \quad (I.1)$$

Le problème d'unité est ici essentiellement porté par le terme  $\mu_0$  : la perméabilité magnétique du vide qui vaut 4 $\pi$  · 10<sup>-7</sup> H.m<sup>-1</sup> en unités SI et correspond à l'unité, sans dimensions, dans le système CGS. Nous utiliserons dans ce manuscrit les unités SI.

On peut rajouter à ces 3 unités de base, la notion de moment magnétique  $\vec{m}$ , correspondant à une aimantation multipliée par un volume et s'exprimant donc en A.m<sup>2</sup> (en emu dans le système CGS). Pour situer les ordres de grandeur qui seront présentés dans les chapitres suivants, un petit inventaire des champs magnétostatiques produits par différentes sources est présenté dans le tableau I.2.

Pour finir cette brève présentation du magnétisme nous allons présenter les échelles utilisées (Fig. I.3). A l'échelle atomique on introduit le quantum magnétique par le Magnéton de Bohr ( $\mu_B$ ) représentant le moment magnétique de l'électron. La théorie du micromagnétisme<sup>4</sup>, introduite par Brown (1904-1983), se situe dans la gamme qui va du nanomètre au micromètre. Elle a pour but



**FIG. I.3:** Échelle métrique du magnétisme. Du spin de l'électron (10<sup>-15</sup> m) à un disque dur en passant par le spin atomique (10<sup>-10</sup> m), le grain cristallin (10<sup>-8</sup> m) et les polycristaux ( $\mu$ m).

Origine magnétique	Champ Magnétostatique
Cerveau de souris	$10^{-13}$ T
Coeur de souris	$10^{-10}$ T
A 100 mètres d'une ligne TGV	$2 \mu\text{T}$
Champ magnétique terrestre (France)	$47 \mu\text{T}$
Champ magnétique terrestre (Pôles)	$70 \mu\text{T}$
A 1 cm d'un fil où circulent 5 Ampères	0,1 mT
Aimant de réfrigérateur	10 mT
Bobine de 1000 spires ( $\phi = 5$ cm et $I = 5$ A)	0,1 T
Aimant de Haut parleur	1,5 T
IRM	6 T
Plus grand champ magnétique généré <sup>†</sup>	45 T
Étoile à neutron	$10^8$ T
Magnétar	$10^{14}$ T

**TAB. I.2:** Quelques champs magnétostatiques produits par diverses sources

d'expliquer le comportement non linéaire des ferromagnétiques.

### c Une histoire d'énergie

Comme nous l'avons vu précédemment, les concepts d'objets (parois et domaines) magnétiques sont nés d'une analyse thermodynamique du magnétisme. A la manière d'un corps disposant d'une énergie mécanique qu'il va chercher à minimiser, un matériau magnétique dispose d'une certaine quantité d'énergie magnétique qui doit être la plus faible possible. C'est ce raisonnement entamé dans les études de Weiss qui a été formalisé par une équation encore utilisée aujourd'hui : l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG - cf. eq. I.2)

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_S} \vec{M} \wedge \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \quad (\text{I.2})$$

Dans cette équation on modélise l'évolution du vecteur aimantation au cours du temps ( $\frac{\partial \vec{M}}{\partial t}$ ), en fonction du champ magnétique effectif ( $\vec{H}_{eff}$ , issu d'un calcul énergétique) régnant dans le matériau.  $\gamma$  est le rapport gyromagnétique absolu ( $\gamma = 2,21 \cdot 10^5 \text{ m.A.s}^{-2}$ ) qui lie le moment angulaire et le moment de spin de l'électron. C'est à partir de ce 1<sup>er</sup> terme que l'on va décrire le phénomène de précession\* du vecteur d'aimantation. On y ajoute un terme d'amortissement.

Cette dissipation est décrite de manière phénoménologique en introduisant une constante d'amortissement de Gilbert  $\alpha$ , dépendante du matériau.

Cette équation a permis notamment à Lev Landau (1908-1968) de prédire la structure en domaines des ferromagnétiques. Ces domaines sont formés pour minimiser l'énergie *démagnétisante*, et l'équilibre est atteint quand  $\vec{M}$  et  $\vec{H}_{eff}$  sont parallèles. Le champ démagnétisant peut sortir de la matière, ce qui a été mis en évidence par l'expérience de Bitter<sup>5</sup> (1902-1967).

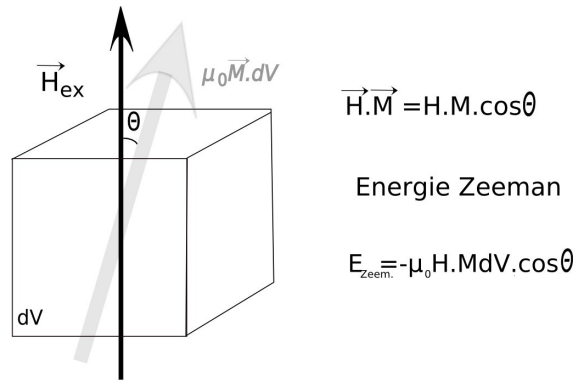
Nous allons présenter ici les différentes sources d'énergie magnétique dans un matériau.

**Énergie Zeeman** S'il existe un champ magnétique extérieur autour d'un dipôle magnétique, ce dernier a tendance à s'aligner sur ce champ (comme une boussole s'alignant sur le champ magnétique terrestre). Cette tendance à l'alignement s'exprime par une quantité d'énergie liée à l'angle entre le

\*Voir aussi Glossaire : [Précession](#)

<sup>†</sup>Mag Lab - Tallahassee (E.U.)

**FIG. I.4:** Représentation graphique de la notion d'Énergie Zeeman

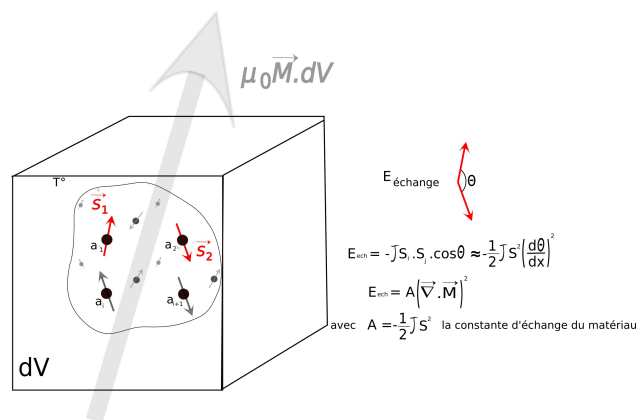


moment du dipôle et le champ magnétique (Fig. I.4), c'est l'énergie Zeeman :

$$E_{Zeem} = -\mu_0 \vec{M}_S \cdot \vec{H}_{ex}(\vec{r}) \quad (I.3)$$

**Énergie d'échange** Le comportement d'un ferromagnétique tend vers un équilibre, décrit par Weiss comme la configuration où tous les moments magnétiques du matériau sont alignés les uns avec les autres (la saturation magnétique). C'est ici l'angle entre deux spins\* du matériau qui va déterminer une autre forme d'énergie du système : l'énergie d'échange (ce terme s'explique par le biais de la mécanique quantique, mais notre but n'est pas ici d'entrer dans ces considérations). Ce terme énergétique est directement lié à la configuration en domaines magnétiques : moins il y a de domaines, moins il y a d'énergie.

**FIG. I.5:** Représentation graphique de la notion d'énergie d'échange



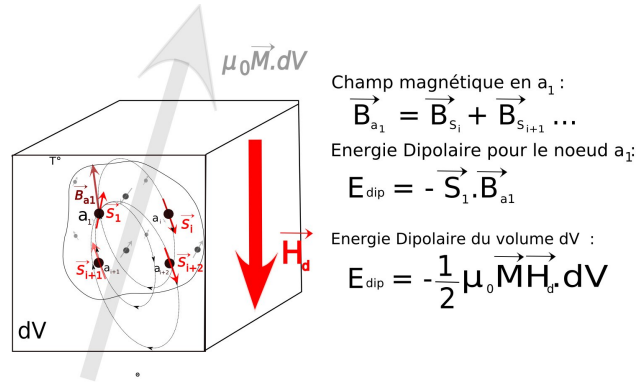
Si on considère le même élément de volume que pour l'énergie Zeeman, on associe à chaque spin une énergie dépendant de ses voisins (Fig. I.5). Cette interaction d'échange s'exerce à courte distance. Une constante d'échange  $A$ , fonction du matériau, permet de quantifier cette énergie à plus grande échelle :

$$E_{ech} = A \left( \vec{\nabla} \cdot \vec{M}(\vec{r}) \right)^2 \quad (I.4)$$

**Énergie Dipolaire ou Démagnétisante** Par opposition à l'échange qui s'exerce à courte distance, l'interaction dipolaire est une interaction à longue portée. L'effet dipolaire force un spin à s'aligner avec le flux magnétique produit par tous les autres spins qui l'entourent.

\*Voir aussi Glossaire : [Spin](#)

**FIG. I.6:** Représentation graphique de la notion d'énergie dipolaire



Ce terme énergétique est décrit macroscopiquement par le champ démagnétisant  $\vec{H}_d$  que crée l'échantillon sur lui même (ce champ magnétique peut être calculé dans une approche coulombienne à partir des charges magnétiques\* fictives liées aux variations d'aimantation en surface ou en volume). On appelle cette énergie une *auto-énergie* car elle est engendrée par la matière elle-même. Contrairement au terme Zeeman (Eq. I.3) qui est une source extérieure d'énergie l'expression du terme dipolaire est ici précédé d'un facteur  $\frac{1}{2}$

$$E_{dip} = -\frac{1}{2}\mu_0\vec{M} \cdot \vec{H}_d \quad (I.5)$$

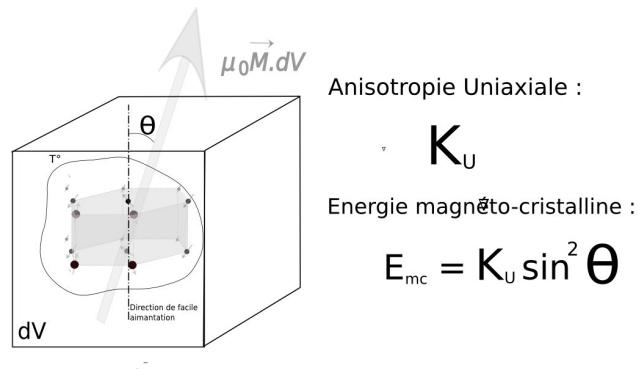
Ces charges magnétiques apparaissent également au niveau des variations de direction de l'aimantation. Une configuration d'équilibre en domaines permet alors de minimiser ces charges et donc l'énergie dipolaire.

La compétition entre l'énergie dipolaire et l'énergie d'échange peut être exprimée par une longueur caractéristique  $\Lambda = \pi\sqrt{2A/(\mu_0M_S^2)}$ . C'est la *longueur d'échange*, qui va déterminer si le matériau, en fonction de ses dimensions, va être aimanté uniformément ou divisé en domaines magnétiques (si  $L \gg \Lambda$ , le matériau à l'équilibre va avoir tendance à se diviser en domaines).

**Énergie Magnéto-cristalline** L'orientation des spins dans le cristal est aussi source d'énergie. L'aimantation résultante a plus de facilité à s'aligner le long de certaines directions d'un cristal. Il en résulte une *anisotropie magnétique* traduite par un terme d'énergie magnéto-cristalline.

Cette anisotropie peut être uniaxiale, cubique ou hexagonale. On l'exprime par un développement limité des puissances des cosinus directeurs de l'aimantation, avec la symétrie appropriée. Nous présentons ici uniquement l'anisotropie uniaxiale du premier ordre.

**FIG. I.7:** Représentation graphique de la notion d'énergie magnétocristalline pour une anisotropie uniaxiale (système hexagonal).



Elle est définie par l'angle que réalise la direction du spin considéré, avec la direction de facile aimantation du cristal :  $E_{mc} = K_u \sin^2\theta$ . L'anisotropie entre en compétition avec l'énergie d'échange dans la formation des parois magnétiques. On définit alors une largeur de paroi de Bloch à partir

\*Voir aussi Glossaire : [Charges magnétiques](#)

de ces 2 termes :  $\delta_w = \pi \sqrt{\frac{A}{K_u}}$ .

Cette énergie peut engendrer une anisotropie magnétique (orientation préférentielle de l'aimantation suivant une direction structurale) que nous aborderons au Chap. III.

**Et d'autres sources d'énergie...** On pourrait aussi citer l'énergie magnéto-élastique (reliée à la modification de la structure du matériau, sous une contrainte), énergie de paroi (énergies d'échange et d'anisotropie contenues dans une paroi magnétique), ou encore l'anisotropie d'échange, mais notre but ici est uniquement de donner un aperçu des phénomènes mis en jeu dans l'établissement d'une structure magnétique.

**Conclusions** Ces différentes sources énergétiques permettent de déterminer l'énergie totale associée à une configuration donnée :

$$E_{Tot} = \int_{\Omega} \left[ A(\vec{\nabla} \cdot \vec{M})^2 + E_{an}(\vec{M}) - \mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}_{ex} - \frac{1}{2} \mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}_d \right] dV \quad (I.6)$$

où l'on retrouve les termes définis précédemment intégrés sur le volume ( $\Omega$ ) de l'échantillon.

La dérivation fonctionnelle de cette énergie par rapport à l'aimantation donne le champ effectif  $H_{eff}$ . Ce champ intervient dans l'équation d'évaluation de Landau-Lifshitz-Gilbert (Eq. I.2).

L'équilibre est atteint quand, en tout point, l'aimantation est parallèle au champ effectif ( $\vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} = \vec{0}$ ). Chaque vecteur d'aimantation précède jusqu'à l'annulation du couple.

## d Résultats Micromagnétiques

Comme il sera abordé dans les chapitres suivants, l'apport de simulations micro-magnétiques a été primordial dans notre étude. Je souhaite donc présenter dès maintenant, à la lumière des descriptions précédentes, les outils que nous avons utilisés.

Les résultats présentés ici sont issus de deux programmes. Le premier, GL-FFT, développé par Jean-Christophe Toussaint (Institut Néel, CNRS-INPG), est un code basé sur l'intégration temporelle de l'équation de LLG. Ce code a été principalement utilisé pour les études préliminaires de configurations magnétiques de couches minces (Chap. III) mais aussi pour les études de nanostructures (cf. Chap. IV).

J'ai aussi eu la chance de travailler avec Thomas Jourdan et profiter du code qu'il a développé durant sa thèse (INAC/SP2M/L\_Sim, encadrée par A. Marty et F. Lançon) basé sur une approche multi-échelles. Ce code permet d'avoir une approche à différents degrés de résolution, permettant d'effectuer des simulations sur de grands volumes tout en offrant une précision atomique dans les zones qui le nécessitent (cf. Chap. III).

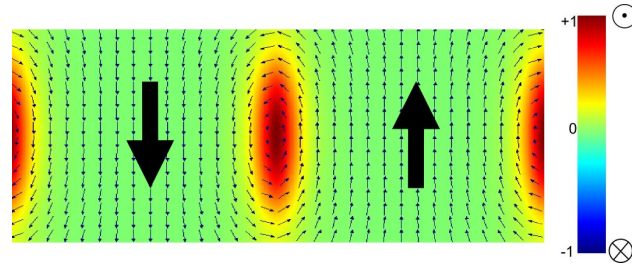
### i Problème à 2 dimensions

Durant cette thèse, nous avons réalisé de nombreuses études sur des couches minces de Fer-Palladium. Ces couches présentent une anisotropie magnétique perpendiculaire au plan du film, qui se traduit par la formation de domaines magnétiques périodiques pointant alternativement vers le haut et vers le bas.

En prenant l'hypothèse d'une configuration de domaines en rubans parallèles (hypothèse fondée sur des observations en Microscopie à Force Magnétique - cf. section suivante), il est possible de simplifier la géométrie du problème à deux dimensions. Le système est alors considéré comme invariant suivant la 3<sup>ème</sup> dimension.

La croissance, la caractérisation structurale et magnétique de ce type de couches fera l'objet du chapitre III. Des mesures MFM ont permis de mesurer une pseudo-période des domaines de l'ordre





**FIG. I.8:** Simulation Micromagnétique effectuée avec le code GL-FFT sur une couche de Fer Palladium ordonnée  $L1_0$  de 40 nm. Les deux directions magnétiques du plan sont présentées en champ vectoriel. La troisième dimension est matérialisée par un jeu de couleurs comme décrit sur l'échelle du schéma

de 100 nm. Nous définissons donc comme conditions initiales : 2 domaines magnétiques, 1 pointant vers le haut, l'autre vers le bas. Ces domaines sont séparés par une paroi à variation sinusoïdale. Cette configuration est entrée dans le programme suivant un certain maillage, à chaque maille est associé un macrospin. Plus le maillage est fin, plus le calcul est précis et long. Il est nécessaire de s'assurer que l'hypothèse de continuité du micromagnétisme est vérifiée (variations de  $\vec{M}$  faible entre deux mailles). Dans le cas du Fer-Palladium, la longueur d'échange est de l'ordre de 3 nm. Nous avons donc choisi un maillage de  $0.781 \times 0.625$  nm (la troisième dimension est alors considérée comme infinie).

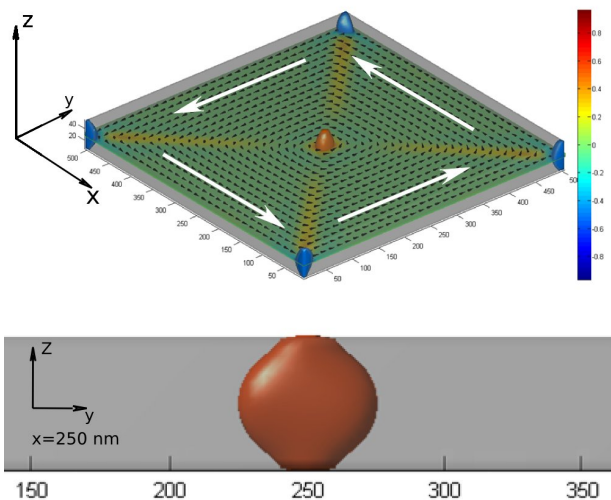
Le programme calcule le champ effectif associé à la configuration et le réinjecte dans l'équation de LLG. Quand le couple sur chaque noeud passe en-dessous d'un seuil fixé, l'équilibre est considéré comme atteint (Fig. I.8).

La configuration des vecteurs d'aimantation obtenus par ces simulations micromagnétiques nous sera très utile pour simuler les clichés attendus en microscopie de Lorentz (cf. Chap. II).

## ii Problème à 3 dimensions

La troisième dimension devient nécessaire quand l'invariance observée dans le cas précédent n'est pas vérifiée, comme par exemple lors de l'étude de nanostructures.

Si on considère le même vortex mais cette fois-ci dans une nanostructure, d'épaisseur finie, la topologie de celui-ci va varier dans l'épaisseur. Le plot présente donc une base carrée de  $500 \times 500$  nm, sur une hauteur de 50 nm. Les grandeurs magnétiques caractéristiques utilisées sont celles du Fer à l'état massif : Constante d'anisotropie ( $4^{eme}$  ordre) :  $K_1 = 4.8 \cdot 10^4 \text{ J.m}^{-3}$ , Constante d'échange :



**FIG. I.9:** Simulation Micromagnétique à 3 dimensions effectuée avec GL-FFT. Les deux images correspondent à une distribution seuillée de l'aimantation (supérieure à  $0.5 \cdot M_s$ ) selon l'axe  $z$ . La première image montre une vue en trois dimensions du plot simulé tandis que l'image du bas est une coupe selon l'axe  $x = 250$  nm.

$A = 2 \cdot 10^{-11} \text{ J}\cdot\text{m}^{-1}$ , Aimantation à saturation :  $\mu_0 M_S = 2,1 \text{ T}$ . Le maillage est composé de cubes de  $3.91 \text{ nm}$  de côté.

Le résultat du calcul, effectué par J.C. Toussaint, est présenté dans la Fig. I.9. On peut y observer le volume du coeur de vortex dans l'épaisseur du plot (suivant  $z$ ). Celui-ci, plutôt que d'adopter une structure cylindrique présente une forme de "baril". Cette forme est due à une différence, le long de l'axe  $z$ , dans la compétition entre énergie d'échange et énergie dipolaire. En effet en surface, l'accumulation de charges magnétiques tend à resserrer la largeur du vortex. L'effet des charges est par contre moins important dans le volume. La largeur du vortex  $y$  est alors moins contrainte par le champ dipolaire. Pour voir cet effet par le calcul, on effectue en fait la même approche que celle employée pour la largeur de la paroi Bloch, mais en substituant l'énergie dipolaire  $\mu_0 M_S^2$  à celle d'anisotropie<sup>6</sup>. Ainsi la diminution de l'effet du champ dipolaire est traduit par la diminution de l'énergie associée, et donc à l'élargissement du coeur de vortex.

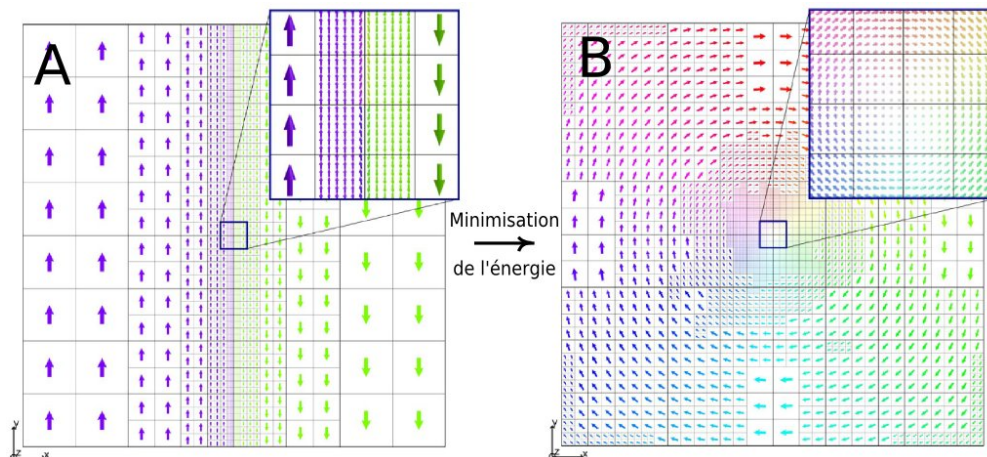
Le vortex est aussi prolongé jusqu'aux coins du plot par des parois de Néel particulières (Néel asymétriques, cf. Chap. IV). Dans ces coins on trouve une autre composante perpendiculaire, qui s'oppose à l'aimantation dans le coeur, pour fermer le flux magnétique.

La forme de ce coeur de vortex sera largement discutée au Chapitre IV.

### iii Analyse multi-échelles

La description du micromagnétisme (comme vu dans les 2 paragraphes précédents) et celle du magnétisme à l'échelle atomique diffèrent. Le calcul atomistique rend compte de l'action de la structure cristalline dans la distribution magnétique globale. Cette échelle atomique a permis par exemple de simuler le rôle de la structure des défauts cristallins dans le piégeage des parois magnétiques<sup>8</sup>. Par contre la multiplication des points de maillage va limiter très fortement le volume qu'il est possible de simuler.

L'approche multi-échelles consiste à adapter le maillage du problème en fonction de la résolution nécessaire. Ce maillage est défini par la méthode des différences finies<sup>9</sup> dans les zones dites micromagnétiques, tandis que le calcul est direct quand on atteint la résolution atomique (quand l'aimantation varie rapidement - hors du modèle micromagnétique). Je présente ici brièvement un exemple de ce genre de problème : le cas d'un vortex (nous verrons au chapitre III une application directe de ce travail).



**FIG. I.10:** **A** Configuration magnétique initiale : deux domaines d'aimantation planaire sont séparés par une paroi abrupte. Cette paroi est décrite par un maillage plus fin, permettant de créer une légère désorientation des spins au centre de l'image pour favoriser la formation du vortex (cf. encart). **B** Configuration magnétique après minimisation de l'énergie. L'aimantation au coeur du vortex pointe hors du plan (cf. encart). *Images issues de la ref.*<sup>7</sup>

On considère ici un système de dimensions  $140 \times 140 \times 3,5$  nm, sur un réseau cristallin cubique (paramètre de maille 0,35 nm), les autres données sont disponibles en ref<sup>7</sup>. Le nombre d'atomes dans ce volume est d'environ 1,6 million, ce qui rend impossible un calcul par une approche atomistique. L'intérêt de la méthode multi-échelles est de conserver une description satisfaisante du coeur de vortex, tout en simulant cette structure à l'échelle de la dizaine de nm. On observe que le maillage, au niveau du coeur de vortex, s'est adapté à l'échelle atomique, alors qu'il est plus proche d'une description en macrospins (micromagnétisme) ailleurs (Fig. I.10). C'est cette technique qui nous a permis de simuler des défauts magnétiques, observés expérimentalement dans les couches minces de FePd (cf. Chap. III).

## I.2 Microscopies Magnétiques

Maintenant que nous avons défini quelques concepts du micromagnétisme, introduisant les notions de parois et de domaines magnétiques, nous allons aborder diverses techniques permettant de les observer. La plupart des méthodes qui sont présentées ici découlent de techniques de caractérisation initialement prévues pour révéler la structure des matériaux. Des développements ont ensuite permis de les rendre sensibles aux propriétés magnétiques. C'est pour ne décrire que cela que je me limiterai à des descriptions brèves des méthodes originales.

De nombreuses études comparatives ont déjà été réalisées sur l'imagerie magnétique<sup>6,10,11,12,13,14</sup>. Nous allons ici les différencier suivant les quatre critères suivants :

- **La résolution spatiale** permet de déterminer la capacité de la méthode à différencier deux contributions magnétiques spatialement distinctes. Cette résolution est associée à un **champ de vue** qui définit la taille de la zone imagée.

- **La sensibilité** est un paramètre difficile à quantifier. Elle révèle la quantité de matériau magnétique nécessaire à l'obtention d'un contraste.

On va aussi regrouper dans ce terme l'origine du signal magnétique (aimantation, induction, ou champs de fuite seuls) ainsi que l'orientation de la composante sondée (aimantation parallèle ou perpendiculaire à la couche magnétique par exemple).

- **Le mode d'acquisition** peut être en balayage (acquisition point par point) ou en plein champ avec une optique appropriée. Le type de sonde utilisée (faisceau de particules ou champ proche) détermine notamment la durée de l'acquisition d'une image : une image nécessitant le balayage d'une pointe en chaque point est a priori beaucoup plus longue à acquérir qu'une image où l'information est issue de la déformation d'un front d'onde.

- **L'environnement** de l'expérience regroupe toutes les contraintes extérieures à l'expérience : la source d'information (électrons, rayons X, courant,...), les conditions expérimentales (vide, grands instruments,...), la facilité d'acquérir des données (coût, connaissance préalable de l'instrument,...). De plus, cet environnement définit les paramètres extérieurs qu'il est possible de faire varier pendant l'expérience (champ magnétique, température,...)

Ces quatre critères me semblent être les plus pertinents pour présenter et comparer les différentes techniques d'imagerie magnétique. L'étude par microscopie électronique à transmission sera ici succincte puisque le prochain chapitre y est entièrement consacré.

### a MFM - Magnetic Force Microscopy

La microscopie à force atomique (AFM - Atomic Force Microscopy) a été découverte dans les années 1980<sup>15</sup>, dérivée de la microscopie à effet tunnel que nous aborderons dans un prochain paragraphe. L'AFM permet de révéler la topographie de la surface d'un matériau jusqu'à l'échelle atomique. Le principe est d'effectuer un balayage très proche de la surface de l'échantillon avec un levier (ou *cantilever*) muni d'une pointe, et d'analyser l'interaction de la pointe avec les atomes de la surface.

Cette interaction est régie par les forces de Van Der Waals (VDW) qui décrivent comment 2 atomes s'attirent ou se repoussent. Ces forces déforment le levier portant la pointe. La déformation est détectée à l'aide d'un laser réfléchi sur la face arrière du levier (Fig. I.11). Le mode d'utilisation qui nous intéresse ici est le mode "tapping" qui consiste à faire vibrer le levier et d'observer, non plus les déformations, mais les variations d'oscillation dues aux forces de VDW.

Le MFM est l'extension de cette technique, adaptée pour l'imagerie magnétique. Si la pointe est recouverte d'un matériau magnétique (généralement du Cobalt-Fer) et que l'objet d'étude est lui-même magnétique, une force supplémentaire régit les oscillations : l'interaction magnétique. Un premier balayage permet d'effectuer l'acquisition classique de la topographie. Le second permet alors de s'affranchir de cette donnée topographique en effectuant le balayage à hauteur fixe de la surface (là où les forces de VDW sont supplantées par les forces magnétiques - typiquement de l'ordre de 20 nm).

Si on considère la pointe comme un dipôle magnétique, on définit cette interaction par la force :

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

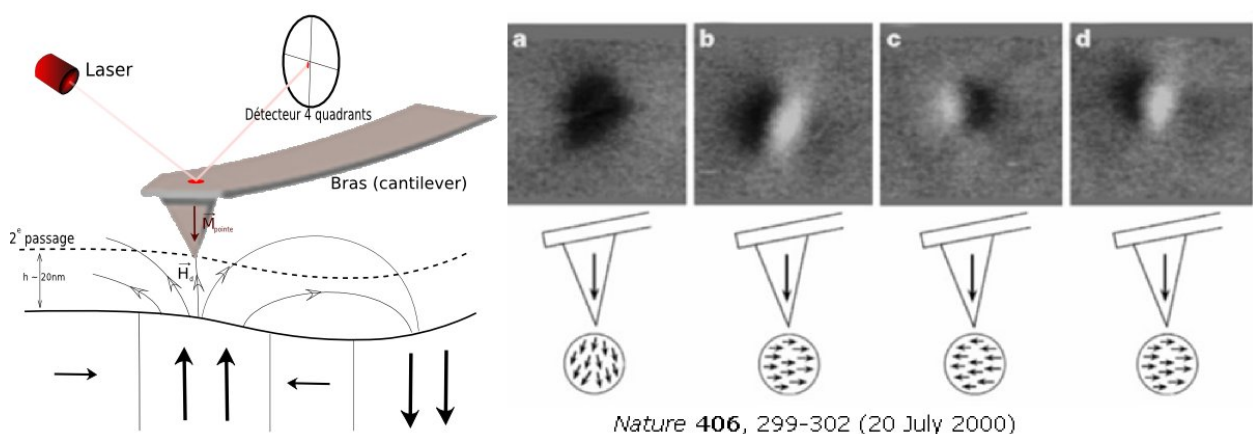
où  $\vec{m}$  est le moment magnétique de la pointe, et  $\vec{H}_d$  les champs de fuite sortant de l'échantillon.

**Résolution spatiale** La microscopie à force magnétique permet d'atteindre une résolution de 10 nm dans les meilleures conditions<sup>16</sup> (traditionnellement cette résolution est de 30 nm<sup>17</sup>) avec un champ de vue maximal de  $100 \times 100 \mu\text{m}$

**Sensibilité** Elle est difficile à quantifier car le MFM est avant tout sensible aux champs de fuite du matériau. Elle est reliée non pas à l'aimantation ( $\vec{M}$ ) dans la matière, mais à l'induction magnétique ( $\vec{B}$ ) hors de celui-ci.

Seules les composantes parallèles à l'aimantation de la pointe ( $\vec{m} \cdot \vec{H}_d$ ) sont détectées. La pointe peut par contre être aimantée dans n'importe quelle direction et ainsi sonder tout type de composante. On définit la sensibilité du MFM par la détection de phase (détection des variations de l'oscillation du levier), calculée à partir de 3 facteurs  $\Delta\phi = \frac{Q}{K} \nabla_z F$ <sup>19</sup> :

- Le facteur de qualité  $Q$  du levier ( $\sim 500 - 5000$ )



**FIG. I.11:** Principe de la microscopie à Force Magnétique. La figure de droite est un exemple de résultat MFM sur une particule de magnétite (extraite d'un tissu de poisson). Les images font  $75 \text{ nm} \times 75 \text{ nm}$ . Les schémas sous chaque image présentent la configuration magnétique de la particule, déduite de l'expérience. Un champ est appliqué dans le plan pour retourner l'aimantation dans la particule : a) 0 mT, b) +150 mT, c) -150 mT, d) +130 mT. *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>18</sup>

- Sa constante d'élasticité  $K$  ( $\sim 10 \text{ N.m}^{-1}$ )
- La détection du déphasage par le système électronique

Les valeurs du signal magnétique détectables sont donc définies par  $\nabla_z F$ . Les valeurs rapportées sont de l'ordre de  $10^{-5} \text{ N.m}^{-1}$ <sup>20,21</sup>.

La sensibilité peut aussi être ajustée en jouant sur le moment magnétique de la pointe.

**Mode d'acquisition** La durée du balayage d'une image en MFM est de l'ordre de quelques minutes, dépendant du nombre de points d'échantillonnage. Ce temps est principalement limité par le procédé mécanique du mouvement de la pointe.

**Environnement** C'est sur ce point que la technique de MFM est la plus compétitive puisqu'elle offre, outre une facilité de prise en main, un coût relativement faible. Elle nécessite un état de surface propre, mais peut accepter tout type d'échantillon présentant une surface plane.

Il est aussi possible d'effectuer des mesures dynamiques : sous champ magnétique ou en température (mais elles augmentent très vite le coût de l'instrument).

Notons que l'aimantation de la pointe peut avoir un effet non négligeable sur les distributions magnétiques observées (retournement local de l'aimantation) et engendrer des artefacts de mesure.

## b Sp-STM - Spin Polarized Scanning Tunneling Microscopy

La microscopie à effet tunnel (STM - Scanning Tunneling Microscopy<sup>22</sup>) possède aussi son pendant magnétique. Cette technique, développée au centre de recherche d'IBM en 1982, a permis d'effectuer les premières observations et manipulations d'atomes.

Elle repose sur le courant tunnel qui circule entre un matériau conducteur et la pointe du microscope, sans qu'ils soient en contact. Ce courant varie de façon exponentielle avec la distance entre les deux électrodes (pointe/surface). Il est donc très sensible à la distance entre les atomes de surface et les premiers atomes de la pointe, et permet ainsi de mesurer la topographie à l'échelle atomique. Si les électrons qui circulent entre la pointe et l'échantillon ont tous le même spin (on dit qu'ils sont polarisés), la résistance du système va varier suivant l'aimantation traversée au niveau de l'échantillon<sup>23</sup>. Ce sont les bases de la Magnéto-Résistance Tunnel<sup>24</sup>. La pointe du STM est alors recouverte d'un ferromagnétique (ou d'un antiferromagnétique) et le système pointe-échantillon peut alors être comparé à une vanne de spin\*.

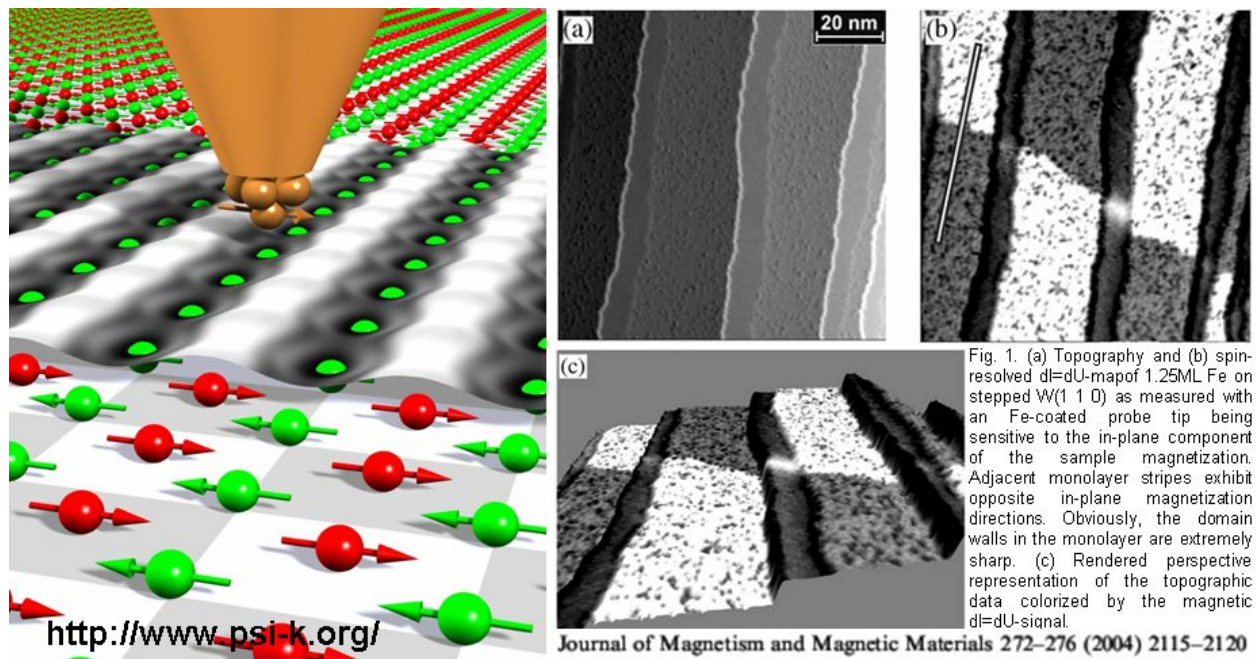
**Résolution spatiale** Le Sp-STM possède la meilleure résolution spatiale de toutes les techniques présentées ici puisqu'il dispose d'une résolution atomique.

**Sensibilité** La technique est sensible à toutes les directions de l'aimantation puisque la barrière tunnel va dépendre de la direction de l'aimantation du matériau déposé sur la pointe<sup>25,26</sup>. Une pointe recouverte de Fer est par exemple utilisée pour obtenir une sensibilité planaire. En utilisant du FeGd (on utilise maintenant le Cr, antiferromagnétique, qui présente l'avantage de n'induire aucun champ dipolaire, pouvant retourner l'aimantation dans l'échantillon) on obtient une sensibilité perpendiculaire à la surface.

L'information n'est pas réellement quantitative. En fait, s'il fallait remonter à une mesure quantitative, il faudrait pouvoir intégrer tous les états occupés et polarisés en spin, proches de la surface et dans le matériau.

**Mode d'acquisition** La durée de balayage d'une image en Sp-STM est du même ordre que celle des autres techniques en microscopie en champ proche : la minute.

\*Voir aussi Glossaire : [Spin Valve](#)



**FIG. I.12:** Principe de la Microscopie tunnel polarisée en spin et résultats sur un film de Fer (1,25 MC) déposé sur Tungstène présentant des marches atomiques. La première image (a) est une image topographique, la deuxième (b) représente la composante planaire de l'aimantation (acquisition avec une pointe recouverte de Fe). La troisième image (c) est une image combinée des deux informations. On observe des zones avec une seule monocouche de Fer (contraste de grains dans l'image topographique) et des zones où 2 monocouches se superposent (couleurs unies, sans grains dans (a)). L'image magnétique présente des zones d'aimantation opposées (blanc et gris sur les marches) séparées par une paroi magnétique, ainsi que des zones d'aimantation planaire nulle (bandes noires). La différence entre ces 2 monocouches est l'anisotropie : planaire pour les monocouches (marches) perpendiculaire pour les bicouches (bords de marche). Aussi, le seul contraste observable au niveau de la bicouche se situe au niveau de la paroi magnétique. *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>26</sup>

**Environnement** Les contraintes expérimentales imposent un environnement très propre (ultra vide) et un échantillon conducteur. De plus, la préparation de la pointe, ainsi que la lourdeur de l'appareillage sont des points cruciaux pour une observation avec cette technique. Il est possible d'appliquer des champs magnétiques (de l'ordre du Tesla) et de faire des études en température.

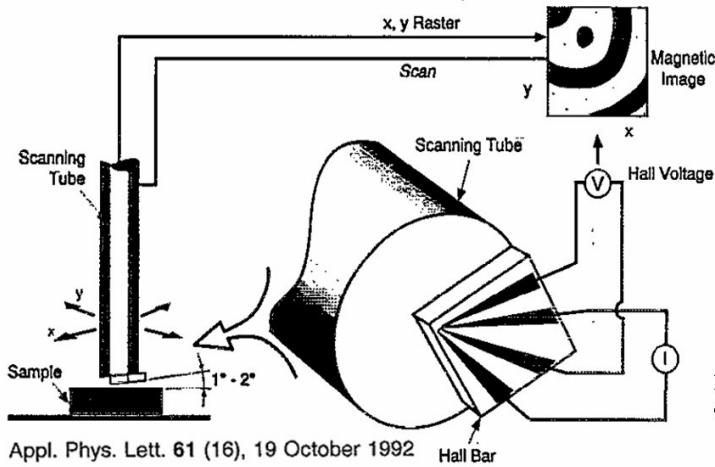
### c SHPM - Scanning Hall Probe Microscopy

Un courant d'électrons (particules chargées) qui traverse un conducteur où règne un champ magnétique, engendre une tension perpendiculaire à sa direction. Les électrons sont déviés de leur trajectoire par la force de Lorentz ( $\vec{F} = q \cdot \vec{v} \wedge \vec{B}$ ). Cette déviation fait apparaître des charges aux bords du conducteur qui créent une tension (la tension de Hall) perpendiculaire à la direction du courant et au champ magnétique traversé.

Il a été très vite envisagé de balayer une surface avec une sonde de Hall pour obtenir une image magnétique<sup>27</sup>. Mais ce n'est que depuis l'apparition des dispositifs piézoélectriques que l'effet Hall peut être utilisé sur un dispositif de microscopie en champ proche, pour sonder le champ magnétique local qui règne à la surface d'un échantillon<sup>28</sup>.

**Résolution spatiale** En microscopie à effet Hall, une limitation intervient avec la taille minimale de la sonde nécessaire pour produire un signal de Hall. La résolution spatiale maximale est estimée à quelques centaines de nanomètres<sup>29</sup>.

## SCANNING HALL PROBE MICROSCOPE



Appl. Phys. Lett. 61 (16), 19 October 1992

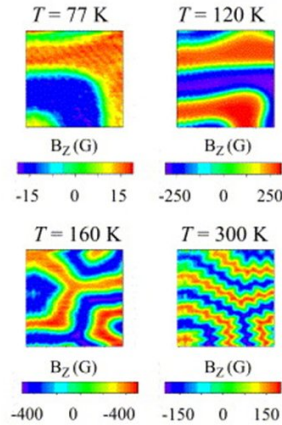


Fig. 1.  $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$  VT-SHPM images of magnetic domains at the surface of  $50 \mu\text{m}$  thick iron garnet films.

Primadani Z, Sandhu A *JMMM* 310 2693-2695 (2007)

**FIG. I.13:** Principe de l'imagerie par effet Hall et résultats obtenus sur une couche de Fer. L'aimantation sondée est perpendiculaire à la couche et ce, pour différentes températures de l'échantillon. On observe ainsi ici une diminution de la taille des parois magnétiques avec la température. *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>30</sup>

**Sensibilité** Un des avantages de la microscopie par effet Hall est la quantification immédiate du champ magnétique sondé. La sensibilité est liée à la taille et au matériau de la sonde. Pour des sondes de  $0.25 \mu\text{m}^2$  des champs magnétiques inférieurs à  $100 \text{ nT}$  ont été détectés<sup>29</sup>.

La composante sondée est, comme pour le MFM, le champ rayonné par la surface de l'échantillon (les champs de fuite).

**Mode d'acquisition** Le mode balayage engendre des temps d'acquisition de l'ordre de la minute, comme les autres méthodes de champ proche.

**Environnement** La microscopie par sonde Hall permet d'effectuer des acquisitions en température. L'application de champs magnétiques sur l'échantillon est limitée, celle-ci modifiant le signal de Hall.

Il existe aussi une technique similaire à la technique SHPM mais qui utilise la technologie SQUID<sup>31</sup> pour mesurer une information quantitative sur le flux magnétique de façon locale. L'avantage de la solution SQUID est sa grande sensibilité (on va pouvoir sonder des champs magnétostatiques de l'ordre de  $100 \text{ pT}$  dans le vide).

On peut ajouter, dans la liste des techniques d'imagerie magnétique en champ proche, une technique plus récente : la **MRFM** (pour Magnetic Resonance Force Microscopy) qui applique le principe de l'imagerie médicale (IRM) à des éléments plus lourds que l'hydrogène. Il est désormais possible d'imager des spins de façon individuelle<sup>32</sup>.

Une technique utilisant les effets magnéto-optiques (détaillés dans le paragraphe suivant) a été couplée à une autre technique à champ proche : le SNOM (pour Scanning Near-Field Optical Microscopy<sup>33</sup>). Cette technique permet d'utiliser la lumière tout en obtenant une résolution bien inférieure à la longueur d'onde utilisée. On balaye dans ce cas une fibre optique au dessus de la surface, et l'on capte non pas la lumière diffractée ou réfléchiée mais l'onde évanescente. Si on polarise cette lumière il est alors possible d'obtenir l'information magnétique traversée par celle-ci<sup>34,35,36,37</sup>.

## d Scanning MOKE - Magneto-Optical Kerr Effect

Les méthodes décrites ci-dessus utilisent une pointe pour venir analyser les champs proches de l'échantillon. Nous allons maintenant passer aux techniques où la sonde est un faisceau de particules, et le signal magnétique résulte d'une modification des propriétés de celui-ci.

L'effet Kerr magnéto-optique<sup>38</sup> provient de la biréfringence du matériau : l'indice de réfraction de la matière dépend de son état magnétique, et de la polarisation de la lumière qui le traverse. La polarisation (elliptique, circulaire ou rectiligne) du faisceau lumineux va évoluer proportionnellement à l'aimantation rencontrée. L'analyse par un polariseur, après interaction du faisceau sur le matériau, renseigne directement sur son état magnétique.

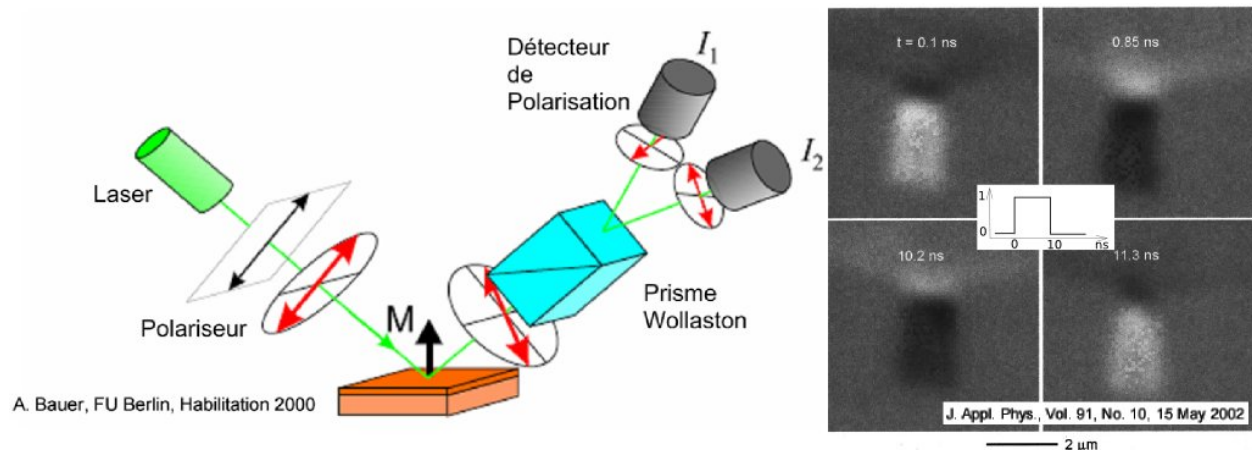
Il existe 2 modes d'analyse : en transmission (on parle d'effet Faraday<sup>39</sup>) ou en réflexion (Magneto-Optical Kerr Microscopy). Le premier est aujourd'hui peu utilisé du fait de la très faible transparence des matériaux magnétiques.

L'analyse de la rotation du faisceau réfléchi peut donner lieu à trois types de signaux : un signal polaire (p-MOKE) pour une composante de l'aimantation perpendiculaire à la surface, un signal longitudinal (L-MOKE) ou transverse (t-MOKE) pour une aimantation parallèle à la surface et orientée parallèlement (resp. perpendiculairement) à la trajectoire du faisceau.

Ce n'est que récemment qu'ont été rapportées les premières images "Haute résolution" réalisées avec la technique SMOKE en utilisant un prisme de Wollaston (en lieu et place de l'analyseur) qui permet d'augmenter fortement le contraste des images<sup>40</sup>.

**Résolution spatiale** C'est le point faible de cette technique puisque c'est la longueur d'onde utilisée qui définit la résolution du MOKE, qui peut donc aller de  $1\ \mu\text{m}$  à  $100\ \text{nm}$  dans les meilleures conditions.

**Sensibilité** La sensibilité n'est plus uniquement de surface puisque cette technique sonde en profondeur la matière (de l'ordre de  $10\ \text{nm}$ ). Elle va être reliée à la qualité de l'analyseur qui doit être capable de détecter des rotations très faibles de la polarisation. Par exemple, un film de permalloy (NiFe) va engendrer une rotation de la polarisation de l'ordre de  $10^{-3}$  degrés<sup>42</sup> (cette rotation re-



**FIG. I.14:** Schéma de principe de la technique de Scanning MOKE et résultats en dynamique obtenus sur une tête de lecture de disque dur par MOKE polaire (aimantation perpendiculaire au plan de la feuille). Le contraste observé correspond au flux sortant (blanc) et rentrant (noir) dans la pointe pour l'écriture des données. Les 4 images sont prises au cours d'un cycle d'écriture alternant 0 et 1 toutes les 10 ns, comme décrit dans le profil au centre de l'image. La microscopie Kerr permet de prendre une image avant et après chaque retournement, à une fréquence très élevée (la sonde optique utilisée est un laser  $730\ \text{nm}$ , à  $100$  femto-seconde). *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>41</sup>



présente en fait le ratio de signal Kerr (lumière dont la polarisation a tourné) sur le signal de fond (polarisation intacte).

Une sensibilité à un moment magnétique de  $10^{-12}$  emu a été rapportée (ce qui correspond à une sensibilité de l'ordre de 1 nT pour l'expérience considérée<sup>43</sup>). Une monocouche de fer donne lieu à une rotation Kerr de l'ordre de  $10^{-4} \sim 10^{-3}$  degrés qui peut être détectée<sup>14</sup>.

**Mode d'acquisition** Le terme de Scanning MOKE rend compte d'un mode d'acquisition en balayage, mais il est aussi possible d'utiliser une microscopie optique classique en lumière polarisée. C'est l'avantage principal de cette technique puisque, selon la lumière utilisée (faisceau laser femto-seconde, rayons X, lumière classique...) le temps d'acquisition peut atteindre la nanoseconde.

**Environnement** Le lumière n'étant pas influencée par l'application d'un champ magnétique ou une modification de la température, de nombreuses études in-situ peuvent être effectuées avec ce mode de microscopie.

### e Bitter Microscopy

Cette méthode dite "de décoration", est la plus ancienne et est encore utilisée aujourd'hui<sup>45,46</sup> (c'est cette méthode qui permit à Bitter d'observer les champs de fuite en imageant pour la première fois des parois magnétiques<sup>5</sup>). Le principe est de déposer sur la surface du matériau une poudre ferromagnétique et d'observer sa distribution à l'équilibre (dans le cas de Bitter, des particules de Ferrite). La limaille de fer par exemple, déposée sur l'extrémité d'un aimant suit les lignes de champ magnétique et présente un aspect "broussailleux", chaque morceau de limaille ayant tendance à s'aligner parallèlement aux lignes de flux magnétique.

Initialement observée à l'aide de la microscopie optique, on peut désormais réaliser des observations à l'aide la microscopie électronique, ou de l'AFM, en utilisant des particules de décoration toujours plus petites.

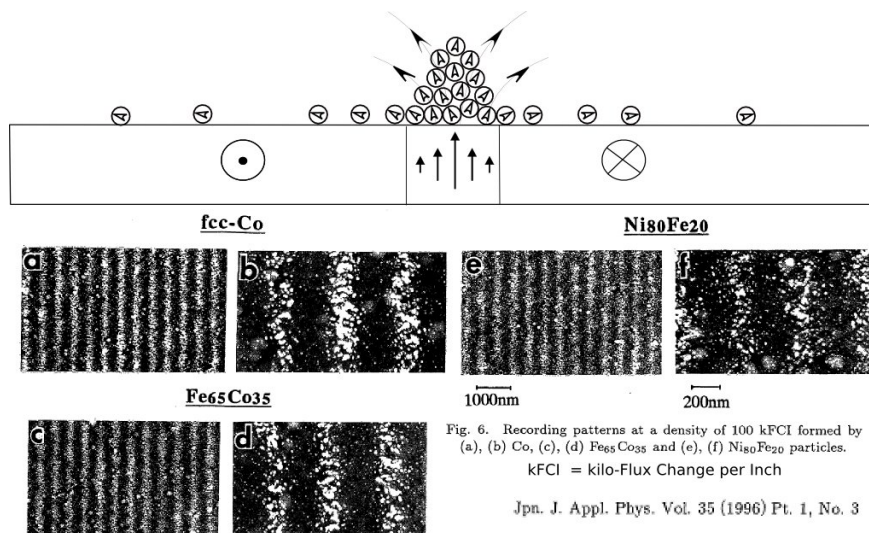


Fig. 6. Recording patterns at a density of 100 kFCI formed by (a), (b) Co, (c), (d) Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> and (e), (f) Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> particles.  
kFCI = kilo-Flux Change per Inch

Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 35 (1996) Pt. 1, No. 3

**FIG. I.15:** Schéma de principe de la microscopie de Bitter. Les nanoparticules s'alignent suivant le champ magnétique produit par l'échantillon. Images obtenues en HRBS (High Resolution Bitter SEM) avec des nanoparticules de différentes compositions, indiquées au-dessus des images. On démontre ici que la taille des particules (au-dessous de 20 nm) ainsi que leur composition joue un rôle prépondérant sur la résolution de la technique. Dans le cas des particules de  $Ni_{80}Fe_{20}$  on atteint la limite superparamagnétique et la résolution chute fortement. *Données expérimentales issues de la ref. 44*

**Résolution spatiale** En utilisant l'AFM ou le MEB, on peut désormais atteindre des résolutions inférieures à 80 nm, en utilisant des particules toujours plus petites (on ne peut pour l'instant envisager des diamètres inférieurs à 20 nm, à cause de la limite superparamagnétique<sup>44</sup>). Le champ de vue peut s'étendre sur des distances millimétriques<sup>44</sup>.

**Sensibilité** Comme pour le MFM, la technique est sensible aux champs de fuite et non pas directement à l'aimantation dans le matériau. Cette sensibilité est reliée aux propriétés magnétiques des particules (l'anisotropie magnétique en particulier).

**Mode d'acquisition** La méthode est en plein champ (sauf pour une analyse AFM), et permet d'imager des zones très larges (plus de 100 mm de côté).

**Environnement** Elle est facile à mettre en oeuvre et ne requiert pas d'instrumentation particulière. L'étalement des nanoparticules est généralement réalisé en suspension dans une solution. Elle est par contre limitée pour l'application de contraintes extérieures, mais permet de réaliser des études en température ou sous l'application de faibles champs magnétiques.

## f X-PEEM - XMCD Photo-Emission Electron Microscopy

La technique PEEM<sup>47</sup> utilisant la photo-émission d'électrons par excitation sous rayons X, ne permet pas de remonter directement à une information magnétique. C'est couplée à l'effet XMCD (X-ray Magnetic Circular Dichroism<sup>48</sup>) qu'il est possible de récupérer un signal magnétique.

L'excitation du matériau par un faisceau de lumière à très haute énergie entraîne l'émission d'électrons secondaires. La réponse du matériau (l'énergie des électrons émis) dépend de son état magnétique et de la polarisation des rayons X incidents (Fig. I.16).

Expérimentalement, on effectue deux acquisitions avec 2 polarisations différentes (circulaire gauche et circulaire droite) et la différence donne alors accès à une information purement magnétique (dichroïsme).

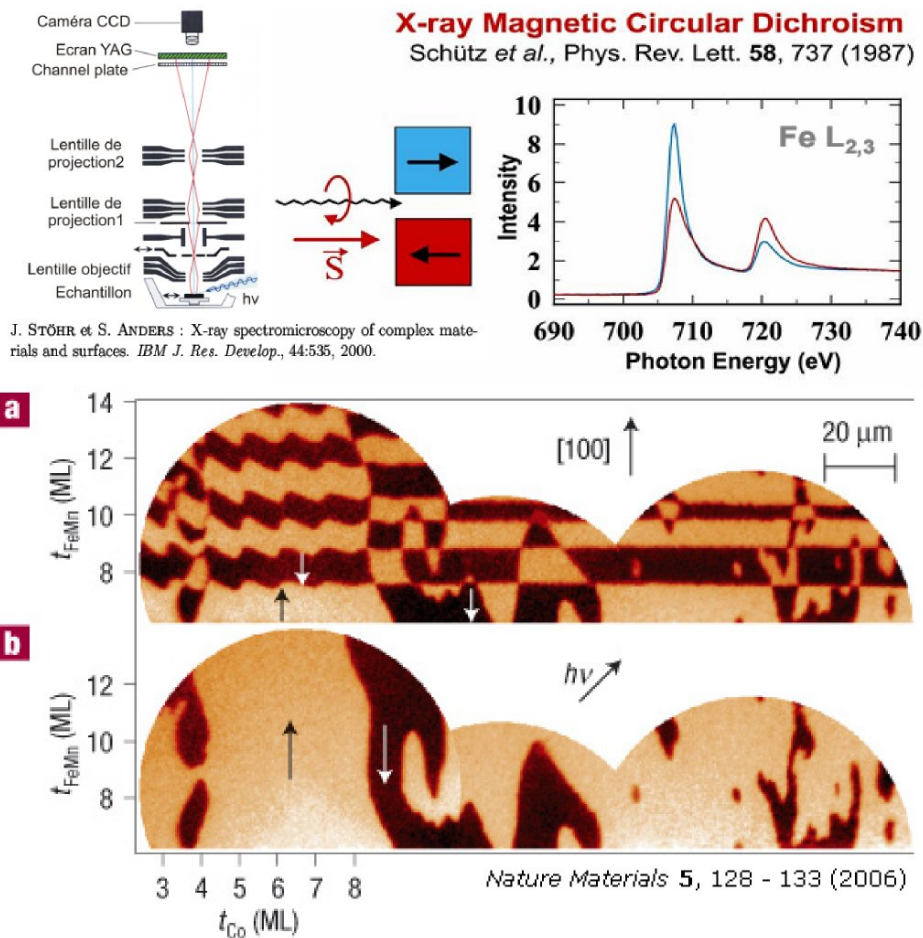
**Résolution spatiale** Les hautes énergies dues à l'utilisation du rayonnement synchrotron (quelques GeV), permettent d'obtenir une résolution spatiale inférieure à 50 nm. La résolution est principalement limitée par les aberrations chromatiques de la colonne électronique.

**Sensibilité** Le X-PEEM utilise un faisceau de lumière en incidence rasante. Il est donc sensible à une composante uniquement planaire de l'aimantation (contrairement au MTXM présenté juste après). Le grand avantage de la microscopie X-PEEM est sa sélectivité chimique. En effet, du fait de la pénétration du faisceau de rayons X dans la matière on peut, en choisissant l'énergie des photons incidents, sélectionner l'élément chimique produisant le signal. On est par contre limité à l'obtention d'électrons pouvant s'extraire de la matière, proches de la surface (environ 10 nm).

Les contrastes peuvent de plus permettre de remonter à une évaluation quantitative de l'aimantation traversée.

**Mode d'acquisition** La méthode est en plein champ. Elle peut notamment être couplée à une analyse LEEM (Low Energy Electron Microscopy<sup>49</sup>) qui permet d'obtenir l'information topographique.

**Environnement** La forte limitation de cette technique est qu'elle nécessite l'utilisation d'un rayonnement synchrotron. De plus elle ne permet pas d'effectuer de façon directe des analyses in-situ très complètes du fait l'espace très limité (proximité de la colonne électronique). Il est tout de même possible d'effectuer des acquisitions en température et pour des faibles valeurs de champ appliqué (de l'ordre de la dizaine de mT).



**FIG. I.16:** Schémas de principe de la microscopie PEEM et de l'effet XMCD. Le schéma de gauche décrit le dispositif d'une colonne PEEM, le schéma de droite le principe du dichroïsme circulaire magnétique. La Figure du bas est le résultat d'une expérience sur un système tricouche Co-FeMn-FeNi pour l'étude du couplage ferro-/antiferromagnétique. La sélectivité chimique du X-PEEM permet d'étudier les configurations magnétiques de la couche de Cobalt (ferromagnétique) et de la couche de FeMn (antiferro) séparément. L'échantillon est préparé pour analyser ce couplage en fonction de l'épaisseur des 2 matériaux : l'axe horizontal des images présente une épaisseur croissante puis constante de la couche de Cobalt (entre 3 et 8 monocouches) et l'axe vertical une épaisseur croissante de la couche d'antiferromagnétique; la couche supérieure de FeNi est constante (6 MC). L'orientation de l'aimantation sondée est indiquée sur le schéma, ainsi que la direction du faisceau incident. On observe ici que le couplage (parallèle ou antiparallèle) suit parfaitement le profil d'épaisseur de l'antiferromagnétique et qu'il oscille avec une période de 2 MC. De plus ce couplage est perturbé par la variation de l'épaisseur du ferromagnétique. On observe effectivement l'apparition de dents de scie (période de 1 MC) sur les rubans d'aimantation au niveau de la variation d'épaisseur de Cobalt, qui disparaissent quand l'épaisseur devient constante. *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>50</sup>

### g MTXM - Magnetic Transmission X-ray Microscopy

Cette technique en transmission utilise un faisceau de rayons X en incidence normale, contrairement à la technique par X-PEEM. Pour un échantillon suffisamment fin (de l'ordre de la centaine de nanomètres d'épaisseur) on peut détecter directement le faisceau de photons à sa sortie. Ainsi, la transmission des photons polarisés circulairement est modulée par l'aimantation rencontrée. La différence de deux images à deux polarisations différentes permet de remonter à une valeur quantitative de l'aimantation traversée<sup>51</sup>. Une extension permet dorénavant d'augmenter la résolution et la sensibilité de cette technique en utilisant une technique holographique<sup>52</sup>.

**Résolution spatiale** La technique repose sur l'utilisation de lentilles dites "de Fresnel" qui permettent de faire converger le faisceau de lumière. Ces lentilles consistent en une succession d'anneaux concentriques de plus en plus fins. L'épaisseur du dernier anneau donne alors la résolution de la technique, qui peut descendre jusqu'à 25 nm<sup>51</sup>.

**Sensibilité** On est ici sensible à la composante perpendiculaire de l'aimantation. Le contraste en STXM est directement relié à l'aimantation de la couche traversée :

$$c_{MTXM} = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \propto \vec{M} \cdot \vec{e}_z$$

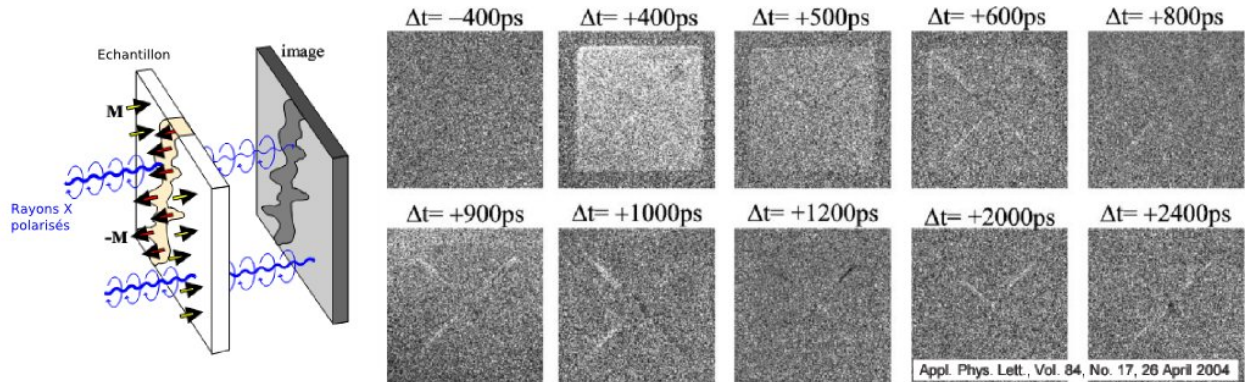
avec  $I_+$  et  $I_-$  les intensités pour la polarisation circulaire gauche et droite respectivement,  $\vec{e}_z$  est la direction de propagation des photons.

Comme pour le X-PEEM on a une sélectivité chimique très forte.

**Mode d'acquisition** La méthode est applicable en plein champ ou en balayage (STXM). La durée d'acquisition peut s'ajuster au détriment de la quantité de signal pour permettre d'observer des phénomènes pendant une durée inférieure à la nanoseconde.

**Environnement** Si la limitation principale est identique à celle du X-PEEM (nécessité d'un rayonnement synchrotron), elle s'affranchit des électrons lents et n'implique que des photons (en entrée et en sortie). Il est ainsi possible d'appliquer des champs magnétiques. On peut aussi réaliser des études en température.

Il est par contre nécessaire d'avoir des échantillons suffisamment fins pour être traversés par la lumière (de l'ordre de la centaine de nanomètres).



**FIG. I.17:** Schéma de principe de la microscopie MTXM<sup>51</sup>. Le résultat présenté est obtenu sur un plot de permalloy ( $Ni_{80}Fe_{20}$ ) couplé à une couche de cobalt (50 nm de chaque espèce), de  $4\mu\text{m}$  de côté, sous l'application d'un pulse de champ ( $100\text{ kA.m}^{-1}$ ). On observe l'état magnétique (composante perpendiculaire seulement) du plot avant (1<sup>ère</sup> image) et après le pulse de champ magnétique. Avant le pulse  $\Delta t = -400\text{ ps}$ , le plot est dans une structure Landau (fermeture de flux avec 4 parois de Néel à  $90^\circ$ ), sans composante perpendiculaire détectable. Juste après le pulse ( $\Delta t = 500\text{ ps}$ ) le plot est dans une configuration majoritairement perpendiculaire, puis l'aimantation précède avant de retrouver l'état initial. Dès le début de la précession (i.e. dès  $\Delta t = 400\text{ ps}$ ) on observe une augmentation du contraste au niveau des parois de Néel. La fréquence de précession donnée par les simulations est de  $1 \sim 2\text{ GHz}$  pour les parois et de  $5,6\text{ GHz}$  pour les domaines avec une amplitude beaucoup plus importante dans les parois. Les mesures MTXM présentées ici (ainsi que des mesures par effet Kerr<sup>53</sup>) corroborent donc parfaitement cette prédiction. *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>54</sup>

## h SEMPA - Scanning Electron Microscopy with Polarisation Analysis

Abordons maintenant les techniques utilisant des faisceaux d'électrons en entrée. Les électrons sont envoyés sur l'échantillon, et les propriétés des électrons secondaires (ou transmis pour la microscopie en transmission) sont analysées pour remonter à l'information magnétique de l'échantillon<sup>56</sup>.

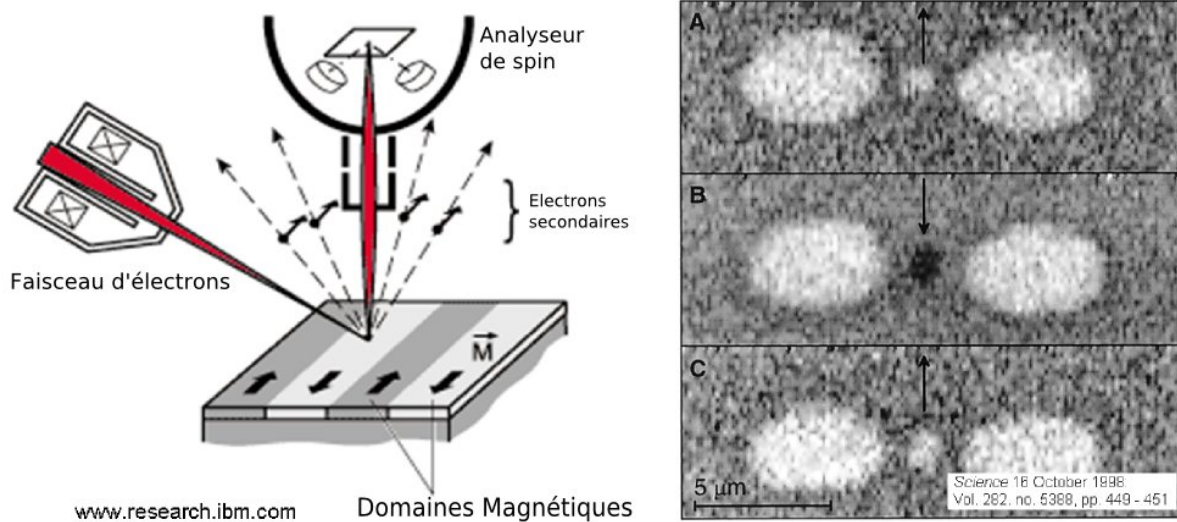
L'intérêt d'utiliser un faisceau électronique est de pouvoir profiter du très fort pouvoir de résolution des techniques électroniques (de l'ordre de 3 nanomètres pour la microscopie Électronique à Balayage<sup>57</sup>, correspondant à la taille de la sonde). Si on couple le faisceau électronique d'un MEB (et donc les électrons secondaires émis) à un détecteur permettant d'analyser leur spin, on peut déterminer simplement et de manière quantitative, l'aimantation dans la zone d'où est émis l'électron :

$$M = \mu_B(n_{\uparrow} - n_{\downarrow})$$

où  $n_{\uparrow}$  (resp.  $n_{\downarrow}$ ) représente le nombre de spins par unité de volume, alignés parallèlement (resp. antiparallèlement) avec l'aimantation rencontrée dans l'échantillon ( $\mu_B$  est le magnéton de Bohr).

**Résolution spatiale** La résolution spatiale est de l'ordre de la résolution attendue dans un MEB : inférieure à 10 nm (une résolution maximale de 5 nm a été rapportée<sup>58</sup>). Le champ de vue peut, lui, s'étendre jusqu'au millimètre.

**Sensibilité** Pour le SEMPA, l'information est issue de l'interaction entre les électrons et l'induction magnétique (champs de fuites et aimantation dans les première couches de la matière). Les composantes de l'induction sondées sont celles perpendiculaires au trajet des électrons. Il est donc



**FIG. I.18:** Schéma de principe du SEMPA. Le résultat présenté est une étude sous champ, présentant l'influence mutuelle d'objets magnétiques. Les 3 éléments sont réalisés à partir d'un dépôt de cobalt (4 monocouches). Un champ magnétique est appliqué ex-situ dans le plan pour aligner les 3 éléments (A). Un champ est ensuite appliqué in-situ (31 Oe), antiparallèlement à l'aimantation dans les éléments. Ceci a pour effet de retourner le petit élément central (B) sans que l'aimantation dans les 2 autres ne soit modifiée. Un champ légèrement supérieur (33 Oe) appliqué dans la direction opposée a pour effet de faire revenir l'élément dans son état initial. Cette asymétrie est provoquée par le champ dipolaire, issu de l'aimantation des 2 éléments satellites. Les simulations prédisent quant à elle une asymétrie de 0.6 Oe. *Données expérimentales issues de la ref.*<sup>55</sup>

possible d'obtenir une information suivant les 3 directions en modifiant l'angle d'incidence du faisceau électronique (en pratique, c'est l'échantillon qui est incliné).

Il est expérimentalement très difficile de quantifier l'aimantation dans les échantillons. Mais l'épaisseur sondée étant de l'ordre du nanomètre, on peut être sensible au moment magnétique produit par seulement quelques milliers d'atomes de Fer (Chap. 6 de<sup>59</sup>).

**Mode d'acquisition** Le temps d'acquisition de clichés en SEMPA est sensiblement supérieure à celle de l'imagerie MEB classique. Le signal n'est significatif que pour de longs temps de pose (entre 10 sec et 1 min.).

**Environnement** Du fait de la forte sensibilité de la polarisation des électrons, il est nécessaire d'avoir un environnement ultra-vide pour ce type de manipulations.

Il est possible d'effectuer diverses opérations in-situ en profitant des développements réalisés pour la microscopie à balayage. L'application de champs magnétiques est par contre relativement limitée.

## i LTEM - Microscopie de Lorentz

Cette dernière méthode fait l'objet de cette thèse et sera détaillée longuement dans le prochain chapitre. Elle permet d'obtenir différentes informations, à la fois quantitatives et qualitatives, sur les parois et les domaines magnétiques, sur les champs de fuites et au coeur de la matière.

**Résolution spatiale** La résolution spatiale est de l'ordre de celle offerte par la microscopie électronique en transmission : quelques nanomètres. Elle dépend avant tout de la résolution de la lentille utilisée comme objectif.

**Sensibilité** C'est l'induction magnétique qui est sondée, et uniquement la composante perpendiculaire au trajet des électrons. La sensibilité peut aussi être adaptée à l'échantillon, au détriment de la résolution spatiale. On peut l'estimer à quelques nm.T, nous en verrons le détail par la suite.

**Mode d'acquisition** L'acquisition de clichés en LTEM est une acquisition en plein champ (il est toutefois possible de profiter du mode STEM pour certaines variantes de la Microscopie de Lorentz). Le temps d'acquisition est ainsi régi par le temps de lecture des capteurs CCD utilisés aujourd'hui : de l'ordre de la seconde. Plus le temps d'acquisition est grand, plus le rapport signal-sur-bruit est élevé (mais plus on s'expose à des dérives instrumentales).

**Environnement** C'est sûrement la force de l'imagerie magnétique dans un TEM puisqu'elle offre une large gamme d'application de champs magnétiques (jusqu'à plusieurs Tesla selon la géométrie), mais aussi tous les développements environnementaux du TEM : application de contraintes, études en température, injection de courant, etc...

Par contre elle nécessite un vide poussé ( $10^{-5}$  mbar) et des échantillons suffisamment fins pour être transparents aux électrons (l'épaisseur doit être inférieure à 100 nm).

## Conclusion

Un tableau comparatif de toutes les techniques abordées dans cette section est présenté en Tab. I.3. Il est basé sur les diverses informations apportées dans ces paragraphes ainsi que sur la littérature abordée dans ces différentes descriptions.

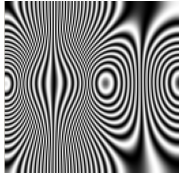
Il me semble important de noter pour finir que l'information magnétique ne peut se résumer à une étude en 2 dimensions. Durant ce travail, nous nous sommes souvent heurtés au problème de la compréhension des contrastes obtenus, notamment dans notre cas du fait de l'intégration de tous les moments magnétiques le long du trajet des électrons. Le développement d'une méthode de caractérisation en volume (comme la tomographie de champs vectoriels<sup>60,61,62</sup>) et un mode de représentation adapté est un des défis les plus excitants des années à venir pour accroître notre connaissance de la distribution magnétique dans la matière.

	Résolution	Sens.	Acquisition	Environnement
MFM	□ 20 nm	⊥	Scan	☺ Nombreuses études in-situ, Simple d'utilisation
	⊞ 10 <sup>4</sup> μm <sup>2</sup>	$\vec{H}_d$	$t_{sc.} = 5 \text{ min}$	☹ Qualitatif, Surface absolument propre
Sp-STM	□ 0.5 nm	⊥,	Scan	☺ Meilleure résolution connue, Multiples composantes
	⊞ 10 <sup>4</sup> μm <sup>2</sup>	$\vec{M}$	$t_{sc.} = 5 \text{ min}$	☹ Qualitatif, Échantillons conducteurs, Ultra-Vide, Rare
SHPM	□ 200 nm		Scan	☺ Quantitatif, Nombreuses études in-situ possibles
	⊞ 10 <sup>4</sup> μm <sup>2</sup>	$\vec{B}$	$t_{sc.} = 5 \text{ min}$	☹ Faible résolution, Sensibilité fonction du matériau
S-MOKE	□ 200 nm	⊥,	Scan/PC	☺ Quantitatif, Tout champ magnétique, Rapide
	⊞ 10 <sup>5</sup> μm <sup>2</sup>	$\vec{M}$	$t_{sc.} \sim 1 \text{ ms}$	☹ 1 seul mauvais point : Très faible résolution
Bitter Microscopy	□ 100 nm	⊥	Plein Champ	☺ Très facile, Aucun équipement particulier
	⊞ 10 <sup>4</sup> mm <sup>2</sup>	$\vec{H}_d$	$t_{sc.} \sim \text{sec}$	☹ Qualitatif, Faibles possibilités in-situ
X-PEEM	□ 50 nm		Plein Champ	☺ Sélectivité chimique, Quantitatif
	⊞ 10 μm <sup>2</sup>	$\vec{M}$	$t_{sc.} \sim 10 \text{ ms}$	☹ Peu d'études in-situ, Nécessite un synchrotron
SEMPA	□ 10 nm		Scan	☺ Bonne résolution, Quantification possible
	⊞ 500 μm <sup>2</sup>	$\vec{M}$	$t_{sc.} = 1 \text{ min}$	☹ Application de champs magnétiques limitée
MTXM	□ 20 nm	⊥	PC/Scan	☺ Très bonne résolution, Quantitatif, In-situ
	⊞ 100 μm <sup>2</sup>	$\vec{M}$	$\mu\text{s} \sim \text{mins}$	☹ Préparation échantillons, Nécessite un synchrotron
LTEM	□ ~ nm		PC/Scan	☺ Excellente résolution, Quantitatif, In-situ
	⊞ 100 μm <sup>2</sup>	$\vec{B}$	$t_{sc.} \sim \text{sec}$	☹ Échantillons nécessitant préparation

**TAB. I.3:** Tableau comparatif de certaines techniques d'imagerie magnétiques. **Résolution** : □ : résolution spatiale, ⊞ : champ de vue; **Sensibilité** : composantes (parallèle et/ou perpendiculaire) et nature de l'information ( $\vec{H}_d$  : champs de fuite) sondées; **Acquisition** : Mode d'acquisition et résolution temporelle. **Environnement** : Principaux avantages et Inconvénients.



*« Sans la science  
l'homme ne serait qu'un stupide animal,  
sottement occupé à s'adonner aux 20 plaisirs de l'amour  
dans les folles prairies de l'insouciance. »<sup>1</sup>*



## Chapitre Deux

# Microscopie à l'échelle du magnétisme : La Microscopie de Lorentz

### Sommaire

Introduction . . . . .	<b>32</b>
II.1 Origine du contraste dans un MET . . . . .	<b>32</b>
II.2 Contraste Magnétique dans un MET . . . . .	<b>36</b>
a Description . . . . .	36
b Obtention du contraste . . . . .	39
c Contrastes de Fresnel . . . . .	40
d Contrastes de Foucault . . . . .	43
II.3 Vers des études quantitatives, la cartographie magnétique . . . . .	<b>45</b>
a Differential Phase Contrast . . . . .	45
b Résolution de l'équation de transport d'intensité . . . . .	52
c Holographie électronique . . . . .	57
Conclusion sur la Cartographie . . . . .	62

## Introduction

Le chapitre précédent nous a permis d'introduire le micromagnétisme, par la définition des objets magnétiques que sont les parois et les domaines. La position et la taille de ces objets permettent de déterminer la configuration magnétique d'un matériau.

Le large éventail de méthodes d'imagerie présenté rend compte de la grande diversité des matériaux magnétiques. Chaque technique possède ses caractéristiques propres (du plus faible coût à la meilleure résolution, en passant par la dynamique et la quantification) qui lui confèrent une place de choix parmi les études magnétiques.

Ce chapitre présente la technique utilisée lors de cette thèse : la Microscopie de Lorentz (ou LTEM - Lorentz Transmission Electron Microscopy). Elle permet de révéler les objets magnétiques que sont les vortex, les parois et les domaines au coeur de la matière. C'est une propriété que possèdent peu d'autres méthodes de caractérisation : l'information est issue du volume, et non des seuls champs rayonnés à l'extérieur de l'échantillon.

Dans le terme générique de microscopie de Lorentz nous intégrons aussi l'holographie électronique pour l'étude d'objets magnétiques. Nous verrons d'ailleurs que certains modes de la microscopie de Lorentz se réclament parfois de l'holographie.

Les divers modes de la microscopie de Lorentz ainsi que l'holographie sont présentés ici à l'aide de simulations de contrastes. Chaque technique est détaillée (position de parois, de domaines, ou reconstruction du champ de vecteur de l'induction magnétique) et illustrée avec une étude en simulation sur un système modèle.

### II.1 Origine du contraste dans un MET

Une introduction succincte à la microscopie électronique en transmission permettra de décrire plus aisément l'imagerie magnétique dans les prochains paragraphes. À ce descriptif s'ajoute le formalisme mathématique couramment utilisé pour décrire la formation de l'image. C'est ce formalisme qui nous a permis de simuler les clichés en microscopie de Lorentz et en Holographie.

#### i Introduction

L'histoire de la microscopie électronique commence avec les travaux de Louis de Broglie (1892-1987). Il eut l'intuition que les électrons (particules massiques et chargées) pouvaient être manipulés comme une onde, afin de les utiliser comme faisceau lumineux dans un microscope. C'est à partir de ses travaux qu'Ernst Ruska (1906-1988) réalisa les premières lentilles électromagnétiques, et plus tard (1933) le premier microscope électronique (Prix Nobel 1986).

La réfraction de la lumière par le verre a conduit à l'usinage des lentilles focalisantes ou divergentes. De la même manière, le champ magnétique généré par une bobine peut agir sur les électrons pour les focaliser. En utilisant ensuite l'optique géométrique de Descartes, on associe plusieurs lentilles entre elles pour réaliser une image agrandie de l'objet étudié.

Un microscope électronique à transmission se divise en plusieurs parties : la source d'où sont extraits les électrons ; un étage **condenseur** où est formée la sonde électronique (la forme du faisceau interagissant avec l'échantillon) ; un étage **objectif** où se forme l'image de l'objet ; enfin un étage de **projection** effectue l'agrandissement de cette image.

#### ii Le canon à électrons

C'est ici que les électrons sont extraits d'un métal à faible travail de sortie. Il existe deux façons de réaliser cette extraction. L'émission thermoionique est un effet thermique : un filament de métal est chauffé proche de son point de fusion pour en extraire les électrons (de l'ordre de 2400 °C

pour le Tungstène et de 1500 °C pour l'Hexaborure de Lanthane). Les électrons une fois émis sont focalisés au niveau d'une anode (le Welhnet) où le cross-over définit la source ponctuelle d'électrons. L'autre technique est l'émission par effet de champ (FEG - Field Emission Gun). Ici l'extraction est produite par l'application d'un fort potentiel (plusieurs kilovolts) entre une cathode en forme de pointe (de rayon de courbure inférieur au  $\mu m$ ) et l'anode. L'émission très directive de la pointe ne justifie pas ici l'utilisation d'un Welhnet, on utilise directement une lentille électromagnétique. Une technique intermédiaire couple les deux effets : la source Schottky (on ne chauffe par exemple le Tungstène qu'à une température de 1800 °C). L'émission des FEG est beaucoup plus brillante (plus d'électrons extraits) mais aussi beaucoup plus cohérente\* (électrons plus proches spatialement). On doit notamment à l'apparition des canons FEG la possibilité de faire de l'holographie électronique. Ces électrons sont ensuite accélérés pour leur donner une haute énergie (en général entre 100 et 300 kV) et diminuer ainsi leur longueur d'onde :

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0eE \left(1 + \frac{eE}{2m_0c^2}\right)}} \quad (\text{II.1})$$

où  $m_0$  représente la masse de l'électron,  $e$  sa charge, et  $E$  est la tension d'accélération. Pour un microscope fonctionnant à 300 kV cette longueur d'onde est par exemple de 1,97 pm. Avec cette accélération, les électrons prennent un caractère pseudo-relativiste (à 300 kV leur vitesse atteint 78 % de la vitesse de la lumière soit 234 000 km.s<sup>-1</sup>).

Le caractère ondulatoire des électrons est décrit par l'équation de la fonction d'onde :

$$\psi(\vec{r}) = A(\vec{r}) \cdot e^{i\phi(\vec{r})} \quad (\text{II.2})$$

où  $A(\vec{r})$  représente l'**amplitude** de l'oscillation de l'onde, et  $\phi$  sa **phase**.  $\vec{r}$  représente la position ( $x, y$ ) dans le plan considéré. La coordonnée  $z$  définit enfin la position de ce plan le long de la direction de propagation (axe optique).

### iii L'étage condenseur

Des lentilles électromagnétiques condenseur permettent de former la sonde électronique (convergente ou parallèle) à partir des électrons émis par la source.

Une lentille électromagnétique est constituée d'un bobinage, dont l'axe est parallèle au trajet des électrons (l'axe optique). Elle permet de focaliser les électrons (et seulement de les focaliser, il n'existe pas de lentille divergente en optique électronique). La distance focale de cette lentille est directement reliée au nombre d'ampères-tour de la bobine ( $N \cdot I$  avec  $N$  les nombre de spires, et  $I$  le courant passant dans la bobine). Sa distance focale  $f$  et donc le champ magnétique produit, est ajustable en jouant sur le courant qui la traverse. Pour renforcer ce champ, la bobine est pourvue d'éléments magnétiques en fer doux : c'est la pièce polaire de la lentille.

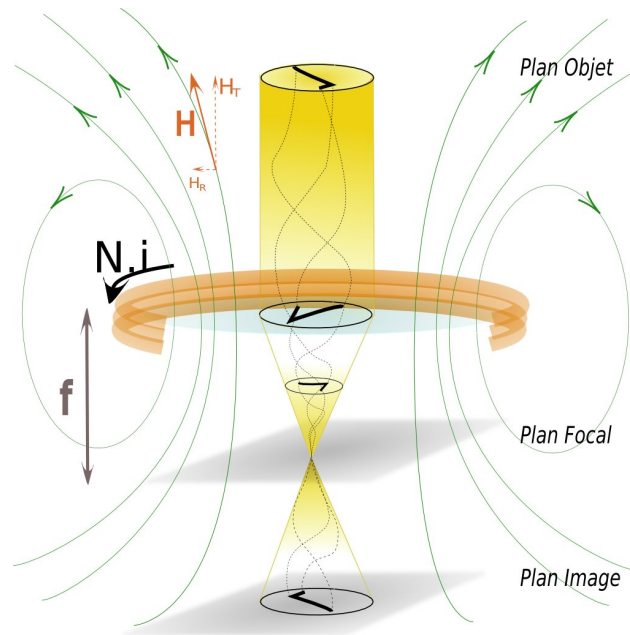
Notons pour la suite que le faisceau électronique subissent une rotation au passage des lentilles, comme présenté sur la Fig. II.1.

Nous parlons ici du concept de **divergence** du faisceau électronique introduit par Marc DeGraef<sup>59</sup>. Dans ce terme, on regroupe diverses causes :

- L'instabilité de la haute tension
- L'instabilité du courant dans la lentilles objectif
- La taille de la source électronique
- La cohérence\* de cette source

Cette divergence que nous noterons  $\theta_c$  introduit une atténuation de l'amplitude de l'onde (voir aussi l'Annexe G).

\*Voir aussi Glossaire : [Cohérence](#)



**FIG. II.1:** Schéma de principe de l'action d'une lentille électromagnétique. La bobine où circule le courant  $N.i$  produit un champ magnétique  $\vec{H}$  qui agit sur le faisceau d'électrons. On associe une distance focale  $f$  à la lentille électromagnétique. On voit que l'image tourne entre le plan objet et le plan image (la vue est volontairement idéalisée pour décrire à la fois géométriquement et techniquement le fonctionnement de la lentille).

#### iv L'étage objectif

La sonde électronique traverse ensuite l'échantillon où diverses interactions électron-matière ont lieu. On les classe généralement en deux types : les interactions élastiques, sans perte d'énergie, et inélastiques où les électrons perdent de l'énergie lors de leur interaction avec les atomes de la matière. L'interaction magnétique que nous aborderons à la section suivante est élastique.

Si en optique classique la résolution peut atteindre, voire être inférieure à la longueur d'onde du faisceau utilisé, ceci est impossible à réaliser en optique électronique. En effet, les aberrations optiques de la colonne (essentiellement celles de la lentille objectif) limitent cette résolution :

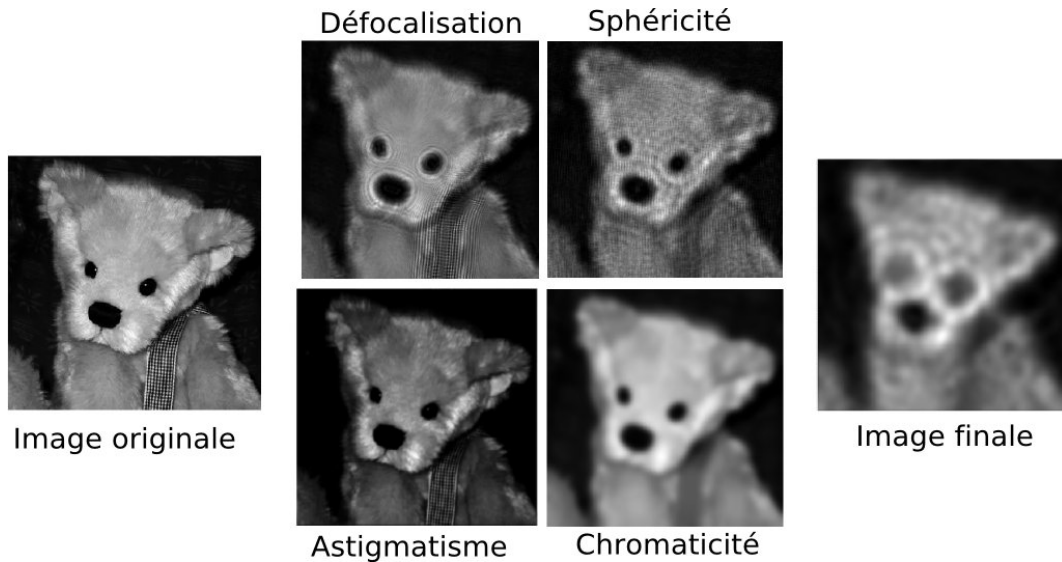
- La **défocalisation** correspond à un mauvais positionnement de l'objet par rapport au plan objet de la lentille objectif.
- L'**astigmatisme** est une différence de focalisation pour les rayons voyageant dans des plans différents : un point dans l'objet devient ainsi un trait dans l'image
- Les **aberrations sphériques** sont une modification du point de focalisation suivant l'endroit et l'angle avec lequel les électrons entrent dans la lentille.

Il existe de nombreuses autres aberrations géométriques. Parmi elle, le **coma** fait "baver" l'image d'un point du fait d'une différence de grandissement suivant la zone de la lentille qui a été traversée.

**La distorsion** transforme une ligne en courbe.

On classe aussi dans le registre des aberrations, l'aberration **chromatique** qui résulte de la dispersion énergétique des électrons qui entrent dans la lentille (de la même manière qu'une lentille de verre réfracte différemment la lumière suivant sa couleur)

On peut observer, dans la figure II.2 une présentation de l'effet individuel puis couplé de plusieurs de ces aberrations.



**FIG. II.2:** Exemples d'aberrations obtenues sur une photographie. Ces aberrations sont volontairement exagérées.

Pour modéliser toutes ces aberrations, on définit une correction à effectuer sur le front d'onde. Ces aberrations étant définies dans l'espace de Fourier, on utilisera le vecteur  $\vec{q}$  représentant les fréquences spatiales  $(q_x, q_y)$ .

Le formalisme mathématique utilisé passe par la définition d'une *Fonction de Transfert*  $T(\vec{q})$  du microscope, qui regroupe les diverses aberrations, ainsi que la divergence :

$$T(\vec{q}) = A(|\vec{q}|)e^{i\chi(\vec{q})}e^{-f_{\theta_c}(\vec{q})} \quad (\text{II.3})$$

- $A(|\vec{q}|)$  correspond au diaphragme de diffraction (appelé aussi diaphragme de contraste). Il permet de sélectionner certaines fréquences spatiales.
- $\chi(\vec{q})$  regroupe les aberrations décrites ci-dessus, et affecte la phase de l'onde électronique uniquement
- $f_{\theta_c}(\vec{q})$  est un terme dépendant de la divergence du faisceau. On parle d'enveloppe de la fonction de transfert puisqu'elle modifie l'amplitude de celle-ci. On définit normalement une deuxième fonction enveloppe représentant les aberrations chromatiques du système que nous n'aborderons pas ici (voir aussi Annexe G).

Cette Fonction de Transfert permet de décrire la formation de l'image dans le microscope. Dans ce formalisme, l'onde électronique subit deux modifications majeures avant la formation de l'image : l'interaction avec l'objet et la propagation de l'onde dans le microscope. La première est une modification de l'amplitude et/ou de la phase de l'onde par l'objet, la seconde résulte de la propagation de l'onde dans la colonne. Elle peut être modélisée par une convolution avec la fonction de transfert du microscope.

#### v L'étage projecteur

Une fois formée, l'image est agrandie par l'étage projecteur. À l'aide de la première lentille on effectue la sélection du plan désiré : plan focal ou plan image de la lentille objectif. Dans le premier cas, on réalise un cliché de diffraction électronique\* et dans le deuxième une image conventionnelle. Un dernier diaphragme permet d'effectuer une sélection d'aire dans le plan image pour sélectionner

\*Voir aussi Glossaire : [Diffraction Electronique](#)

les électrons participant à la diffraction. Après cette première lentille viennent généralement trois lentilles qui composent le grandissement de l'image, de 50 à plus de  $10^8$  fois.

## vi L'image

L'image agrandie, peut finalement être projetée sur un écran fluorescent, sur une plaque photographique ou sur une caméra CCD. Avant cette transcription, il peut exister un dernier étage optique : le filtrage en énergie. Les électrons sont alors sélectionnés en fonction de l'énergie qu'ils ont perdue lors de leur interaction avec la matière (chocs inélastiques). Ce système nous permet notamment de ne garder que les électrons élastiques pour augmenter le contraste de l'image<sup>63</sup>.

C'est lors de la formation finale de l'image que se joue l'un des principaux problèmes de la microscopie électronique : la perte de l'information de phase. En effet, l'affichage sur un écran (ou une caméra CCD) est une "traduction" de l'information portée par l'onde qui se décrit mathématiquement comme l'amplitude complexe de l'onde multipliée par sa conjuguée :

$$I = |\psi(\vec{r})\psi^*(\vec{r})| = |A(\vec{r})|^2. \quad (\text{II.4})$$

L'information de phase est perdue dans l'image obtenue. Or comme nous allons le voir dans la suite de ce manuscrit, c'est dans le déphasage de l'onde que se situe l'information qui décrit l'interaction magnétique entre les électrons et l'objet. Il est tout de même possible de retrouver une information magnétique dans la figure de contraste mais cette information demeure une interprétation du déphasage. L'enjeu des méthodes de reconstruction de phase que nous présenterons dans la suite, est d'obtenir cette information malgré la disparition de la phase dans la mesure.

## II.2 Contraste Magnétique dans un MET

### a Description

La description physique sous-jacente de la microscopie de Lorentz est une force déjà abordée au chapitre précédent sur l'imagerie magnétique : la Force de Lorentz. Des particules chargées ( $q$ ) qui traversent ( $\vec{v}$ ) un lieu où règne un champ électromagnétique ( $\vec{E}, \vec{B}$ ) subissent une force

$$\vec{F} = q \cdot \left( \vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B} \right), \quad (\text{II.5})$$

qui les dévie de leur trajectoire. Les électrons qui traversent un matériau magnétique portent donc, en plus d'une information relative à leur interaction avec la matière, une information relative au champ électromagnétique présent dans, et autour de celle-ci.

De cette équation nous pouvons tirer les principaux enseignements, à la fois fondateurs et limitant de la microscopie de Lorentz :

1. L'information obtenue en analysant la déflexion du faisceau, est dépendante à la fois de l'induction magnétique de l'échantillon et à la fois du champ électrique produit par les nuages électroniques du réseau cristallin
2. Cette information est uniquement relative à l'induction magnétique *perpendiculaire* à la trajectoire des électrons.

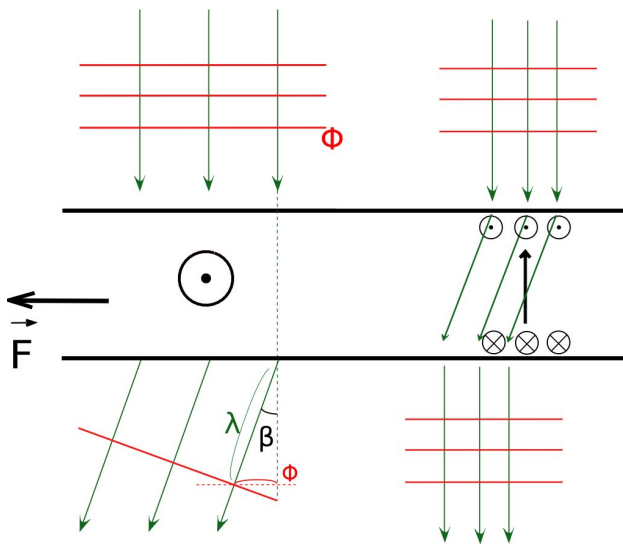
De la première considération il découle une forte limitation : l'information magnétique est mêlée à une information électrique. Il faut donc s'affranchir de la seconde pour espérer quantifier la première. De la deuxième, on doit toujours avoir à l'esprit que seules les composantes perpendiculaires rencontrées par l'électron au cours de sa trajectoire sont prises en compte.

Il existe deux façons de décrire l'action de la force de Lorentz sur le faisceau électronique. Une approche géométrique et une approche ondulatoire. L'approche géométrique considère le résultat de la Force de Lorentz comme une déflexion du faisceau d'électrons<sup>3</sup> d'un angle

$$\beta = \frac{e\lambda}{h} \int B dz. \quad (\text{II.6})$$

Cet angle est dépendant de la longueur d'onde des électrons  $\lambda$  et de leur charge  $e$ , ainsi que de l'induction magnétique  $\vec{B}$  rencontrée tout au long de leur trajet le long de  $z$ . De ceci il faut aussi noter que des cas de compensation de composantes magnétiques ne nous seront pas accessibles (comme décrit sur la Fig. II.3).

Une induction magnétique de 1 T sur une épaisseur de 50 nm défléchit les électrons (accélérés à 300 kV) d'un angle de  $24 \mu\text{rad}$ . Cette valeur est très faible comparée aux angles de Bragg, de l'ordre du  $m\text{rad}$  pour les cristaux standard. L'information est donc principalement localisée autour du faisceau transmis.



**FIG. II.3:** Schéma de principe de l'action de la Force de Lorentz sur la trajectoire des électrons. La figure de gauche présente la déflexion  $\beta$  et le déphasage  $\phi$ . La figure de droite présente le problème de compensation des composantes planaires opposées.

Une approche ondulatoire a été développée par Aharonov et Bohm<sup>64</sup> qui relie l'action du champ magnétique et du champ électrique au déphasage de l'onde électronique :

$$\phi = C_E \int_{\infty} V_{int}(\vec{r}, z) dz - \frac{e}{\hbar} \int_{\infty} A_z(\vec{r}, z) dz \quad (\text{II.7})$$

Dans cette formulation, l'action électrique de l'échantillon, est prise en compte par le Potentiel interne ( $V_0$  ou *Mean Inner Potential*) du matériau étudié. Celle-ci est associée à une constante  $C_E$ , dépendante de l'énergie des électrons et donc du microscope utilisé (voir aussi l'Annexe B). L'intégration sur l'infini indique que toute la trajectoire de l'onde électronique doit être prise en compte. L'action de l'induction magnétique sur la phase est décrite par la composante verticale du potentiel vecteur\* du champ magnétique.

Pour des champs statiques, on utilise la jauge de Coulomb :  $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$ . On peut alors écrire le Laplacien du potentiel vecteur  $\vec{A}$  à partir de ce rotationnel :

$$\Delta \vec{A} = -\text{rot}(\text{rot} A) = -\text{rot}(B) = -\mu_0 \text{rot}(M)$$

En projetant sur la composante suivant  $z$  on a alors :

$$\Delta A_z = -\mu_0 (\partial_x M_y - \partial_y M_x)$$

\*Voir aussi Glossaire : [Potentiel Vecteur](#)



où  $\partial_x = \frac{\partial}{\partial x}$ . On développe alors l'équation de Aharonov-Bohm (cf. Eq. II.7) on ne considérant pour l'instant que l'effet du champ magnétique et on obtient :

$$\Delta_{xy}\phi(x, y) = -\frac{\mu_0 e}{\hbar} \left( \partial_x \int M_y dz - \partial_y \int M_x dz \right)$$

où  $\Delta_{xy}$  correspond au Laplacien à deux dimensions (on intègre sur  $z$  dans la partie droite de l'équation).

Comme vu dans le premier chapitre, l'aimantation dans un matériau possède d'après Weiss, un module constant. On peut donc réduire cette formule en écrivant :

$$\begin{pmatrix} m_x(x, y) \\ m_y(x, y) \end{pmatrix} = \frac{1}{M_s t(x, y)} \int_{-\infty}^{\infty} \begin{pmatrix} M_x(x, y, z) \\ M_y(x, y, z) \end{pmatrix} dz \quad (\text{II.8})$$

le  $M_s$  décrivant l'aimantation à saturation du matériau, ( $m_x$  et  $m_y$  sont alors normalisés entre -1 et 1), et  $t(x, y)$  est l'épaisseur magnétique considérée au point  $(x, y)$ . Il vient alors :

$$\Delta_{xy}\phi = -\frac{\mu_0 M_s t e}{\hbar} (\partial_x m_y(x, y) - \partial_y m_x(x, y))$$

En passant dans l'espace de Fourier on obtient :

$$(q_x^2 + q_y^2)\phi(q_x, q_y) = i\frac{\mu_0 M_s t e}{\hbar} (q_x m_y - q_y m_x)$$

Le Laplacien dans l'espace de Fourier est associé à une multiplication par  $q^2$ .

On remarque pour finir qu'en prenant une notation complexe pour l'aimantation  $\vec{m}$  ( $m = m_x + i \cdot m_y$ ) et pour le vecteur  $\vec{q}$  ( $q = q_x + i q_y$ ) on obtient :

$$\phi(q_x, q_y) = i\frac{\mu_0 M_s t e}{2\hbar} \text{Im} \left[ \frac{m(q_x, q_y)}{q} \right]$$

où  $m(q_x, q_y)$  est la transformée de Fourier de l'aimantation. Ce déphasage exprimé dans l'espace direct donne :

$$\phi(x, y) = \frac{\mu_0 M_s t e}{2\hbar} \text{Im} \left[ (m_x + i \cdot m_y) \otimes \frac{-1}{x + i \cdot y} \right]$$

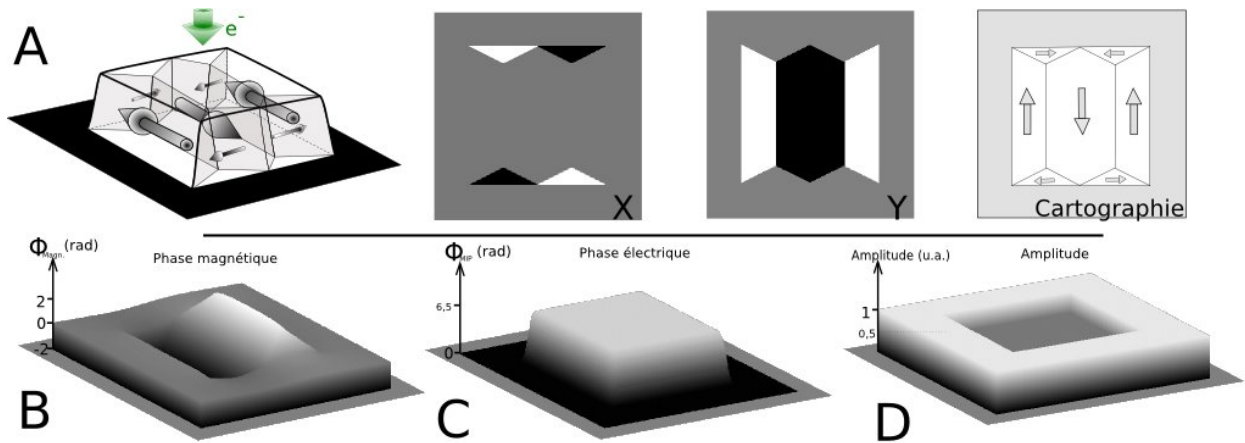
où  $\otimes$  dénote le produit de convolution.

On obtient donc l'information de déphasage de l'onde électronique à partir d'une carte de l'aimantation magnétique.

C'est à partir de ce déphasage que nous avons effectué les simulations de contraste en microscopie de Lorentz. A ce déphasage purement magnétique  $\phi_{MAG}$ , nous pouvons ajouter un déphasage dû à la composante du potentiel interne  $\phi_{MIP}$  décrit lui aussi dans l'équation d'Aharonov-Bohm, à partir du profil d'épaisseur de l'échantillon ( $\phi_{MIP} = C_E V_0 t(x, y)$ ). On définit également une amplitude  $A(\vec{r})$  pour rendre compte de l'atténuation de l'onde par l'objet. Ces différentes composantes sont décrites dans la Fig. II.4.

La différence entre l'approche géométrique et l'approche ondulatoire est fondamentale. La première ne s'intéresse qu'à un aspect géométrique où l'action magnétique de l'échantillon sur le faisceau électronique est une réfraction. On ne peut alors mesurer que des phénomènes décrits géométriquement dans la colonne (réflexion, réfraction, transmission). La deuxième approche par contre, est plus générale puisqu'elle prend en compte les phénomènes de diffraction de l'onde lors de la rencontre avec un obstacle.

Nous utiliserons ces deux approches : la première est un bon moyen d'appréhender "avec les mains" les phénomènes tandis que la deuxième est une approche plus rigoureuse du point de vue physique. C'est notamment par cette approche que nous effectuons les simulations présentées dans cette partie.



**FIG. II.4:** Caractéristiques du système utilisé pour la simulation. **A.** Cartographie magnétique de l'échantillon sous la forme d'un champ de vecteur, et de ses deux composantes suivant x et y. La dernière vue est une représentation en trois dimensions. **B** Déphasage produit par le champ de vecteur en **A.** **C** Potentiel interne de l'échantillon. **D** Amplitude correspondant à l'échantillon.

### b Obtention du contraste

Nous allons à présent rassembler tous les concepts abordés jusqu'ici. Nous considérerons donc :

- Un échantillon magnétique, découpé en trois domaines, d'aimantation planaire opposée. En bord d'échantillon l'aimantation forme des domaines de fermeture, pour minimiser l'énergie dipolaire<sup>6</sup>. L'échantillon est un carré de 100 nm de côté, de 50 nm d'épaisseur, présentant des bords non-abrupts. Son aimantation à saturation est de 1 Tesla (voir Fig. II.4). Son potentiel interne  $V_0$  est choisi du même ordre de grandeur que le Fer (20 V - voir aussi p. 274 de<sup>65</sup> et Annexe B)
- D'après nos clichés expérimentaux sur des nanostructures (plots de Fer au Chap. IV) nous avons pu estimer le rapport d'intensité entre les zones où se situe l'objet étudié et son environnement (ici le substrat). La moyenne de ce ratio est de 25%. Ceci se traduit par une diminution d'un facteur deux de l'amplitude de l'onde électronique lors du passage dans l'objet. Nous avons donc simulé l'amplitude de notre objet avec un puits de profondeur 0,5 (Fig. II.4).
- Un microscope électronique travaillant à 300 kV (on a donc une longueur d'onde  $\lambda = 1,97$  pm et  $C_E = 6,56 \text{ V}^{-1} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ ), équipé pour l'imagerie magnétique, de divergence 0,05 mrad (divergence attendue pour le microscope TITAN).

Nous discutons ici de la nature d'un microscope *équipé* pour l'imagerie magnétique.

L'imagerie traditionnelle en microscopie est réalisée de façon à maximiser la puissance de résolution de la lentille objectif. Pour ce faire la focale doit être la plus faible possible (les aberrations interviennent lors de la propagation). Donc l'échantillon doit être au plus proche de la lentille. Dans les faits, l'échantillon est même au coeur de la bobine, ou plus précisément, au coeur de la pièce polaire de cette dernière. Il est donc soumis au même régime que les électrons qui la traversent : un champ axial de l'ordre de 2 à 3 Tesla. Un tel champ sature alors le matériau d'étude, ce qui rend toute observation de contraste magnétique.

Le microscope peut alors être équipé d'une seconde lentille d'imagerie située plus loin de l'échantillon et travaillant donc à des distances focales bien plus grandes. Son action magnétique sur l'échantillon est nulle. La contrepartie est une diminution du pouvoir de résolution, du fait de l'augmentation des aberrations optiques. Dans la suite nous assimilerons souvent le terme de lentille objectif à cette seconde lentille, traditionnellement appelée Lentille de Lorentz (ou MiniLens dans le cas du JEOL 3010).

Intéressons-nous tout d'abord à la partie centrale de notre échantillon, en négligeant les domaines de fermetures pour plus de simplicité. La Fig. II.5 présente la description géométrique du trajet des électrons.

A la traversée de l'échantillon, deux types de déflexion apparaissent, opposées l'une à l'autre. Elles "découpent" le faisceau en trois parties. Ces trois "faisceaux" d'électrons traversent ensuite le système optique. Chacun d'eux converge en un point dans le plan focal de la lentille objectif, déterminé par l'angle  $\beta$  associé à la déflexion qu'il a subi. Dans notre cas on observe deux spots correspondant aux deux déflexions, au lieu d'un seul spot en temps normal pour le faisceau transmis seul.

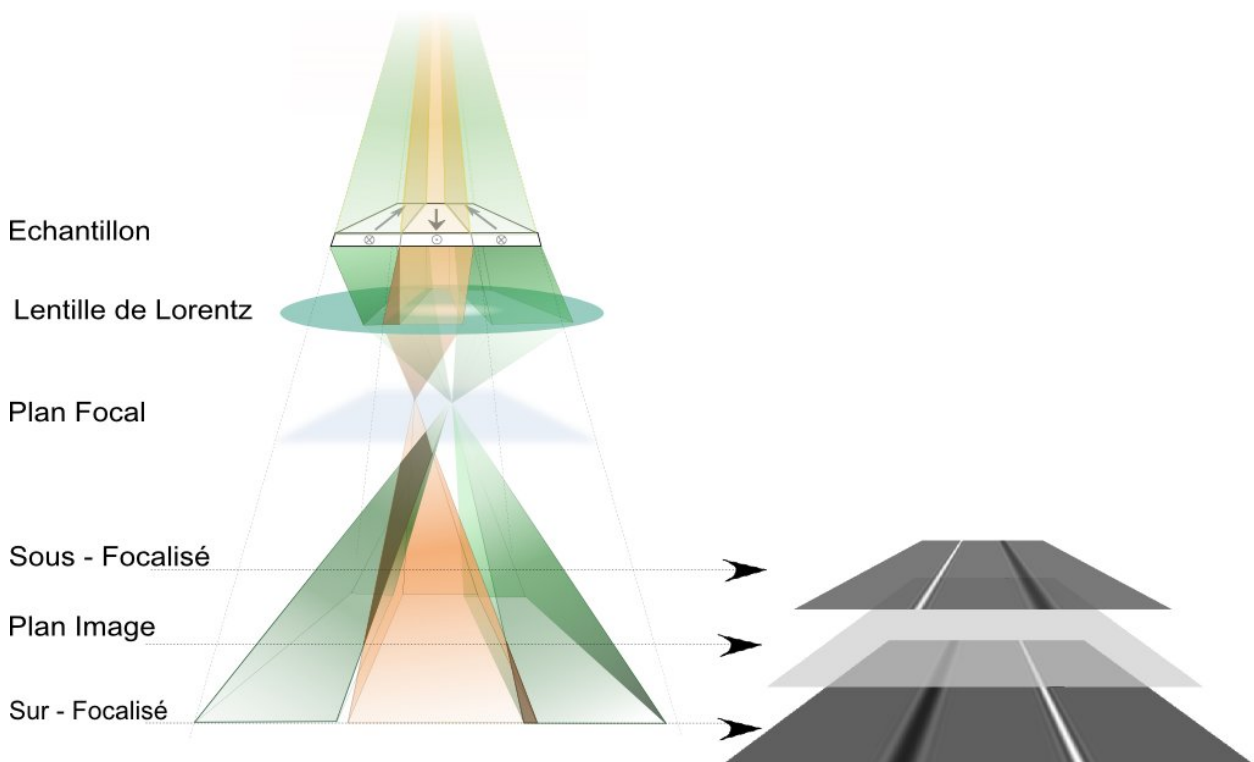
Ces trois parties du faisceau électronique poursuivent ensuite leur trajectoire vers le plan image où cette image est traduite sur un écran. En observant les deux plans (focal et image) de la lentille objectif, nous pouvons d'ores et déjà rendre compte de deux choses :

- dans le plan image on n'observe aucun changement de contraste dû à l'interaction magnétique.
- dans le plan focal, les faisceaux ayant interagi avec la même induction magnétique se rencontrent au même point.

Ces deux remarques permettent de comprendre l'origine des contrastes observés en microscopie de Lorentz : contrastes de **Fresnel** et contrastes de **Foucault** que nous allons détailler dans les deux sections suivantes.

### c Contrastes de Fresnel

Le plan image est le conjugué de celui où se trouve l'échantillon (le plan objet de la lentille). A ce niveau les déflexions magnétiques prennent seulement naissance, nous ne pouvons donc pas observer leur effet dans l'image. Ceci est notamment dû à la disparition de l'information magnétique



**FIG. II.5:** Schéma de principe (description géométrique) de la formation des contrastes de Fresnel en microscopie de Lorentz. Les figures présentées pour les différents plans d'imagerie sont des simulations.

contenue dans la phase.

Avec une approche géométrique on observe qu'en se plaçant au-dessus ou au-dessous de ce plan (loin par rapport à l'épaisseur de l'échantillon), on met en évidence le recouvrement où l'écartement des différents faisceaux électroniques : ce sont les *contrastes de Fresnel*.

Ce déplacement par rapport au plan image le long de l'axe optique a déjà été abordé lors de la description des aberrations optiques des lentilles : c'est la *défocalisation*. On parle de sur-focalisation et de sous-focalisation pour décrire les contrastes par rapport à l'image focalisée.

Comme nous pouvons le voir sur la Figure II.5, les contrastes dans les deux images sur- et sous-focalisées, sont inversés et apparaissent au niveau des parois magnétiques. C'est pour cela que, par abus de langage, les contrastes de Fresnel sont souvent appelés contrastes de parois. Les parois blanches sont aussi appelées *parois convergentes*, et les parois noires, *parois divergentes*.

En poursuivant le formalisme mathématique utilisé depuis le début de ce chapitre, la défocalisation utilisée pour la formation de ces contrastes intervient au niveau de la fonction de transfert du microscope (cf. Eq. II.3).

Nous pouvons écrire alors  $\chi(\vec{q}) = \pi\lambda z|\vec{q}|^2$  où  $z$  est la défocalisation (nous utiliserons en fait  $z$  pour décrire la position de l'image le long de l'axe optique et  $z = \Delta f$  pour parler de la valeur de la défocalisation), elle est de l'ordre du  $\mu\text{m}$  pour la Microscopie de Lorentz.

La divergence est aussi prise en compte car son impact est non négligeable sur la figure de contraste car elle limite la cohérence\* spatiale (la divergence agit à l'ordre 2 pour les fréquences spatiales).

Elle est définie comme :  $f_{\theta_c}(\vec{q}) = \frac{(\pi\theta_c z)^2}{ln2}|\vec{q}|^2$ . L'effet principal de cette divergence est de mêler entre elles, diverses ondes incohérentes issues de divers points de la source (l'onde est convoluée avec une gaussienne, représentant la forme de notre source électronique). Ce terme s'appelle l'enveloppe de la fonction de Transfert. Mais cette approche utilisée pour la simulation de clichés en Haute Résolution est problématique pour la microscopie de Lorentz. En effet elle réalise des approximations (phase faible notamment)<sup>66</sup> qui ne sont plus vérifiées à l'échelle des phénomènes que nous étudions (variation dans la phase de plusieurs radians). Nous ne nous étendrons pas ici sur ce calcul mais le lecteur peut trouver plus d'information en Annexe G. Nous n'utiliserons donc pas le terme de divergence en tant qu'enveloppe de la fonction de transfert, mais bien comme une convolution des images obtenues avec l'image de la source, décrite par  $f_{\theta_c}(\vec{q})$ .

On ne considère pas les autres aberrations, leur impact étant dominé par les larges défocalisations utilisées et de la taille des objets imagés<sup>59</sup> (la défocalisation et la divergence sont les deux seuls termes du 2<sup>e</sup> ordre).

On obtient pour notre système modèle, les figures de contraste présentées dans la figure II.6. On peut noter que le recouvrement des faisceaux ne produit pas une simple ligne blanche mais des franges d'interférence d'intensité décroissante. Ce phénomène d'interférence est décrit par l'optique ondulatoire, et montre les limites de la description par l'optique géométrique.

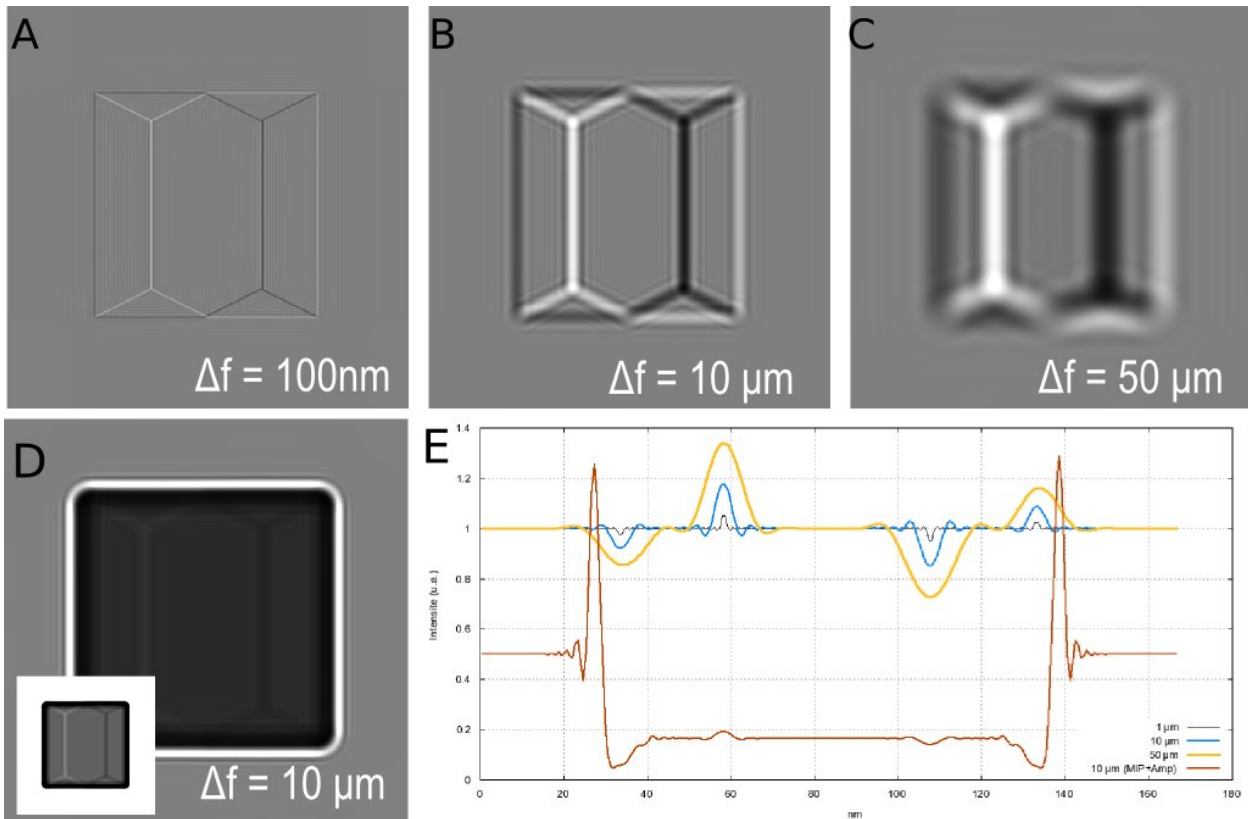
Les contrastes de Fresnel apparaissent pour des défocalisations supérieures à 100 nm. Les zones de contraste blanches et noires sont des zones d'interférences où l'on observe des franges d'intensité dues à la rencontre entre des ondes cohérentes. Cette cohérence est décrite par le terme de divergence utilisée (ici 0,05 mrad). Ainsi sur un microscope équipé d'un canon FEG, ces franges seront très marquées autour des zones de contrastes de Fresnel tandis que dans le cas d'une émission thermique elles seront lissées.

Il existe une défocalisation optimum, pour laquelle les contrastes de Fresnel sont plus facilement interprétables. Trois paramètres entrent en ligne de compte :

**Le contraste de l'image** † qui permet de séparer les contributions magnétiques du fond continu

\*Voir aussi Glossaire : [Cohérence](#)

†Voir aussi Glossaire : [Contraste](#)



**FIG. II.6:** Contrastes de Fresnel simulés pour la configuration magnétique décrite dans le texte ( $\mu_0 M_s = 1T$ ,  $\Delta t = 50 \text{ nm}$ ,  $V_0 = 20 \text{ V}$ ). **A,B,C** Contrastes de Fresnel dus uniquement à la contribution magnétique. La défocalisation utilisée est indiquée sur les images. **D** Contrastes de Fresnel obtenus pour une contribution magnétique et électrostatique. Un terme d'amplitude est aussi ajouté (cf. texte). L'insert montre la même image avec une échelle de gris optimisée pour les contrastes de Fresnel magnétiques. **E** Comparaison des profils (profil horizontal, pris au milieu des images) pour les différentes défocalisations en A,B,C et D. L'intensité de l'image D a été ici divisée par 2 pour pouvoir l'observer sur la même échelle.

(on a par exemple un contraste de 33 % pour une défocalisation de  $50 \mu\text{m}$ , et de seulement 5 % pour  $1 \mu\text{m}$ )

**La résolution** qui définit la qualité de l'image. Plus  $\Delta f$  augmente plus la résolution de l'image baisse (on peut situer la paroi à 1 nm près pour une défocalisation de  $1 \mu\text{m}$ , alors que cette précision tombe à 10 nm pour une défocalisation de  $50 \mu\text{m}$ )

**La divergence** du microscope utilisé joue aussi sur l'interprétation de ces contrastes. Ici les simulations, sont effectuées avec une divergence de 0,05 mrad. Une divergence plus faible va introduire plus d'interférences, et dans le même temps augmenter le contraste.

Le paramètre optimum déterminé par la simulation, pour ce type d'échantillon, est une défocalisation de  $10 \mu\text{m}$ . C'est à cette valeur que nous nous référons par la suite.

Si on rend compte de la composante électrostatique associée à l'échantillon (Fig. II.6-D), la figure de contraste obtenue est fortement perturbée par la contribution électrique en présence de variations d'épaisseur. De plus, les contrastes apparaissent dans une zone où l'amplitude de l'onde est fortement perturbée par l'objet. En jouant sur les niveaux de gris affichés nous pouvons néanmoins observer les contrastes là où l'épaisseur est homogène (insert de la Fig. II.6-D).

Nous pouvons observer sur les profils d'intensité (Fig. II.6-E) que l'intensité dans ce dernier cas est largement dominée par les contrastes dus à l'épaisseur de l'échantillon.

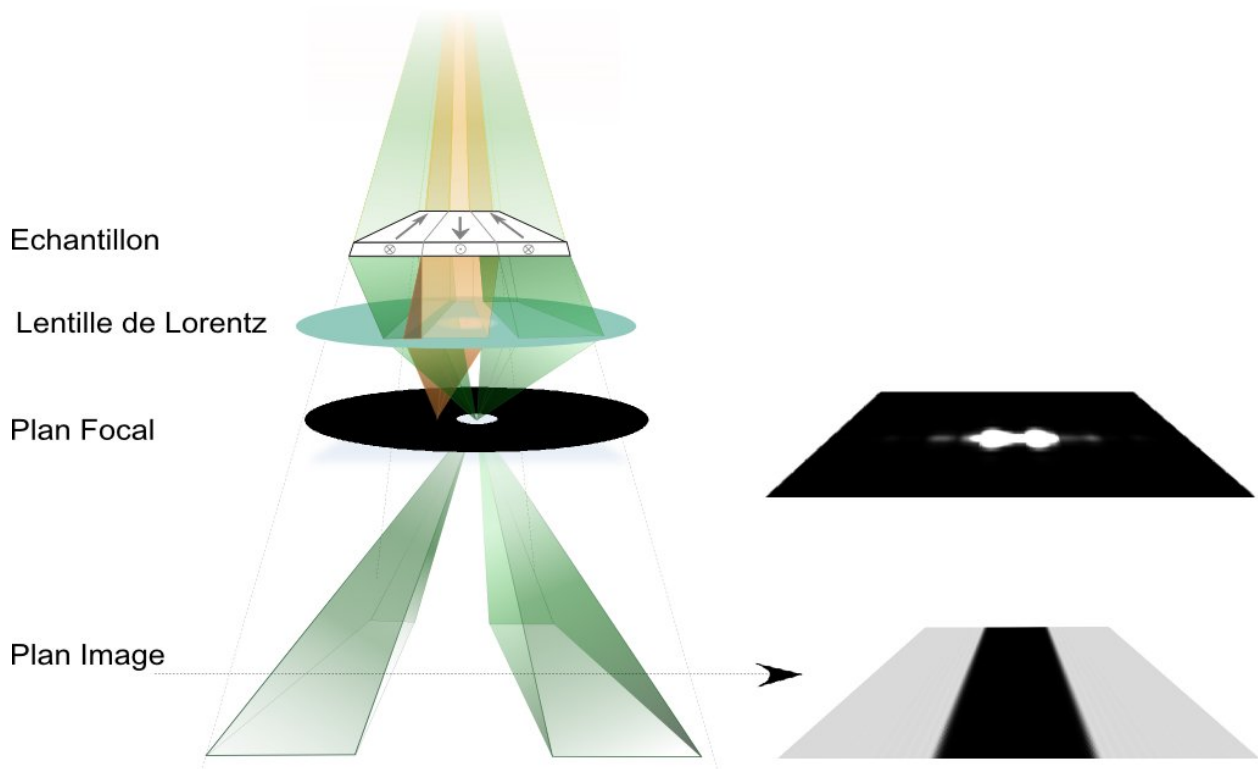
#### d Contrastes de Foucault

Comme présenté sur la Fig. II.7, l'information magnétique se situe aussi dans le plan focal. Ainsi, les différents faisceaux défléchis se concentrent en des points différents de ce plan (à la manière des faisceaux diffractés\*). L'insertion d'un diaphragme permet de sélectionner l'une ou l'autre des déflexions magnétiques produites par notre système (à la manière d'un "champ sombre" magnétique). Le résultat dans le plan image est l'élimination des électrons, au niveau des déflexions magnétiques coupées : ce sont les *Contrastes de Foucault*. On appelle aussi ces contrastes, contrastes de domaines. Dans l'expression mathématique de la fonction de transfert du microscope, c'est le terme relatif au diaphragme  $A(|\vec{q}|)$  qui varie pour former les contrastes. Il est positionné de manière à ne sélectionner que des électrons défléchis. L'apparition de franges d'interférence dans le domaine illuminé résulte de la diffraction du faisceau électronique avec les bords du diaphragme (non décrites par l'approche géométrique).

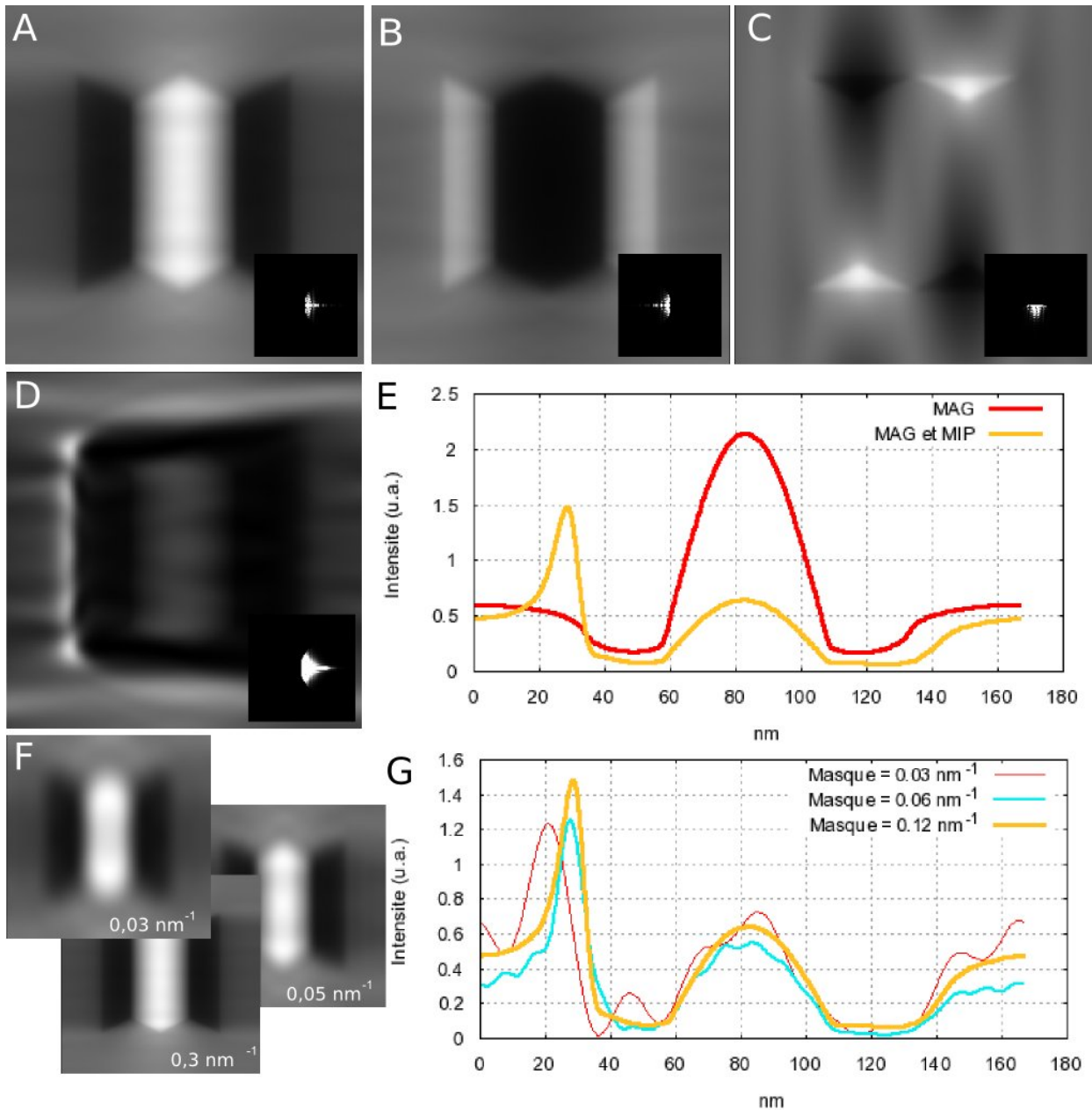
Les figures II.8-A à C montrent le résultat d'une acquisition en mode Foucault pour trois positions du diaphragme. On observe alors les différentes orientations de l'induction magnétique dans notre structure. Les inserts montrent la distribution des déflexions au niveau du plan focal. Dans ces différents cas, une partie du faisceau transmis est comprise dans la zone sélectionnée par le diaphragme. Ceci explique la présence d'intensité non nulle autour de l'échantillon (fond gris). On observe par contre que les zones d'aimantation opposée aux déflexions sélectionnées sont vierges de tout signal (zones noires).

La prise en compte de la contribution du potentiel interne et de l'amplitude de l'onde modifiée de

\*Voir aussi Glossaire : [Diffraction Electronique](#)



**FIG. II.7:** Schéma de principe (description géométrique) de la formation des contrastes de Foucault en microscopie de Lorentz avec simulation.



**FIG. II.8:** Contrastes de Foucault simulés pour la configuration magnétique décrite dans le texte. le diaphragme utilisé a un diamètre équivalent à  $0.12 \text{ nm}^{-1}$ . Les inserts montrent le plan focal après insertion du diaphragme. **A.** Diaphragme en position  $(q_x, q_y) = (0, +0.11 \text{ nm}^{-1})$ . **B.**  $(q_x, q_y) = (0, -0.11 \text{ nm}^{-1})$ . **C.**  $(q_x, q_y) = (-0.11 \text{ nm}^{-1}, 0)$ . **D.** Mêmes caractéristiques qu'en **A**, mais avec l'ajout de la contribution du potentiel interne et de l'amplitude. **E.** Comparaison du profil de **A** et **D**. **F.** Mêmes caractéristiques qu'en **A**, mais avec différentes tailles de diaphragme, indiquées sur les images. **G.** Comparaison du profil pour différentes tailles de diaphragmes.

façon dramatique la figure de contraste (Fig. II.8-D et E). Le contraste dominant est celui dû à l'épaisseur de l'échantillon (courbe jaune). Mais malgré cette composante très forte, il est tout de même possible de déterminer les zones où l'induction magnétique pointe dans la direction sélectionnée avec une bonne précision.

La taille du diaphragme utilisé influe aussi sur la résolution des images. Un diaphragme très petit va couper de nombreuses hautes fréquences, porteuses de l'information des variations rapides de l'induction. Dans le même temps, plus ce masque est petit, plus nous retirons du bruit expéri-

mental dans l'image. L'étude proposée ici (Fig. II.8-F et G) montre que la composante magnétique sélectionnée est mieux définie si la taille du diaphragme est maximum. Nous savons par contre qu'expérimentalement, cette taille est fixée (il existe en général entre deux et quatre tailles différentes de diaphragme) et qu'il est plus difficile d'être précis dans le positionnement d'un grand diaphragme.

Notons que la plus forte contrainte expérimentale de ce mode est de positionner exactement le plan focal de la lentille de Lorentz dans un plan du microscope où il y a un diaphragme. Nous utilisons le diaphragme de sélection d'aire du JEOL 3010 en augmentant la focale de la lentille et en réalignant ensuite manuellement les autres lentilles de projection. Un logiciel de pilotage a été développé pour permettre d'effectuer aisément l'alignement du microscope dans ce mode d'imagerie et ainsi focaliser le diaphragme.

## II.3 Vers des études quantitatives, la cartographie magnétique

Le but d'une technique de caractérisation par imagerie est de ne pas rester uniquement descriptive. Le reproche régulièrement fait à la microscopie, est de fournir de belles images sans donner toutefois d'informations réellement quantitatives sur le matériau. C'est sur ce point que la microscopie électronique va se détacher de certaines techniques d'imagerie magnétique : la possibilité de déterminer quantitativement l'induction magnétique traversée par le faisceau électronique tout en conservant une résolution de l'ordre de quelques nanomètres.

Le travail de cette thèse a donc été d'implémenter, d'utiliser et d'optimiser les différents modes de cartographie magnétique dans un MET. Les trois techniques qui vont être présentées ci-après font appel aux concepts présentés jusqu'à présent : optique géométrique ondulatoire, formation des contrastes et information contenue dans la phase.

### a Differential Phase Contrast

Cette technique est une première introduction à la cartographie en LTEM. Elle se base sur la géométrie présentée dans les schémas précédents. Nous allons pour la décrire partir du mode Foucault, mais elle a été initialement développée sur un microscope STEM (Scanning Transmission Electron Microscope) par John Chapman<sup>67</sup>.

#### i Introduction

Le nom "Phase Contrast" vient de la découverte, par Fritz Zernike (1888-1966), de la microscopie par Contraste de Phase<sup>68</sup> (Prix Nobel en 1953). Le principe est d'imager les variations de phase de l'onde dans l'intensité en créant une interférence. Celle-ci consiste à retarder d'un quart de longueur d'onde (on parle de lame quart-d'onde) le faisceau transmis par l'échantillon pour faire apparaître un contraste lors de sa rencontre avec un faisceau référence. Ceci est traditionnellement réalisé dans un microscope optique par l'insertion d'anneaux (les "phase plate") au niveau du plan focal des lentilles condenseur et objectif. On sépare ainsi le faisceau en deux parties (l'objet et la référence) que l'on recombine (en ajoutant du déphasage) après la traversée de l'échantillon. En microscopie électronique ce contraste de phase est la base de la microscopie Haute Résolution (HRTEM) qui est aussi appelé contraste de diffraction. Dans ce cas les interférences sont produites non pas par un faisceau objet et un faisceau référence, mais par les nombreux faisceaux diffractés par les atomes du cristal.

Le contraste de phase comme décrit par Zernike fut réalisé en microscopie électronique par Dekkers et De Lang<sup>69</sup> dans un STEM, en proposant de comparer (de différencier) le signal mesuré sur deux parties du détecteur. En effet, en analysant la distribution du signal STEM ils remarquèrent qu'en première approximation, et si on considère le déphasage indépendant de la position de la sonde, cette position sur le détecteur varie<sup>70</sup>. C'est en utilisant un détecteur à quatre quadrants que J. N.



Chapman<sup>67</sup> put remonter à une information magnétique en analysant le déplacement du disque sur le détecteur dans la fin des années 70.

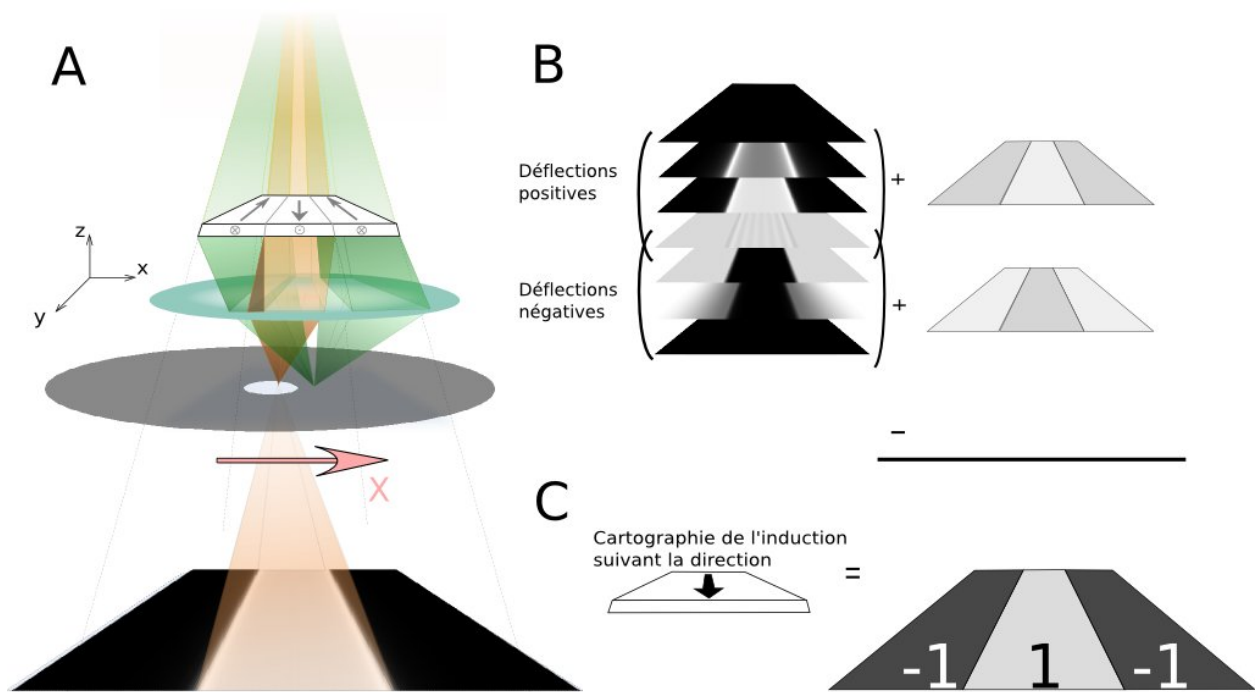
La présence d'une induction magnétique défléchit le faisceau électronique. La division du détecteur en plusieurs zones permet de mesurer la direction du vecteur de translation dépendant de l'induction traversée. C'est le Differential Phase Contrast (DPC).

En utilisant le théorème de réciprocité<sup>71</sup> qui lie les modes TEM et STEM, Hawkes<sup>70</sup> proposa l'idée d'implémenter le DPC sur un microscope TEM. McFayden<sup>72</sup> réalisa les premières expériences, en équipant son microscope conventionnel d'un détecteur STEM, puis Adam Daykin<sup>73</sup> décrivit et implémenta finalement le DPC dans un TEM. C'est cette géométrie que nous allons présenter.

## ii DPC en mode TEM

Partant du mode Foucault, une série d'images est enregistrée en déplaçant régulièrement le diaphragme selon une direction X dans le plan focal (Fig. II.9-A). Cette série permet d'obtenir la cartographie de la composante de l'induction perpendiculaire au balayage. Pour cela A. Daykin a montré<sup>73</sup> qu'il suffit de déterminer deux images : l'une est la somme des intensités pour les déflexions positives, l'autre pour les déflexions négatives (Fig. II.9-B). La différence de ces deux images donne alors la cartographie de la composante Y de l'induction magnétique (Fig. II.9-C). Une autre acquisition réalisée en déplaçant le diaphragme dans une direction perpendiculaire à la précédente (Y), donne alors accès à la composante X de l'induction. Ces deux images fournissent donc une cartographie complète de l'induction magnétique de la zone observée.

En pratique dans le microscope, il est très difficile d'effectuer des pas précis et réguliers du diaphragme, manuel dans notre cas. Ce problème peut être contourné en gardant le diaphragme fixe et



**FIG. II.9:** Principe d'une acquisition en Differential Phase Contrast. **A.** En mode Foucault, le diaphragme est balayé dans le plan focal pour effectuer des acquisitions sélectionnant différentes déflexions. Toutes les images (**B**) permettent ensuite, par addition, de remonter à la composante magnétique, perpendiculaire à la trajectoire du diaphragme (**C**).

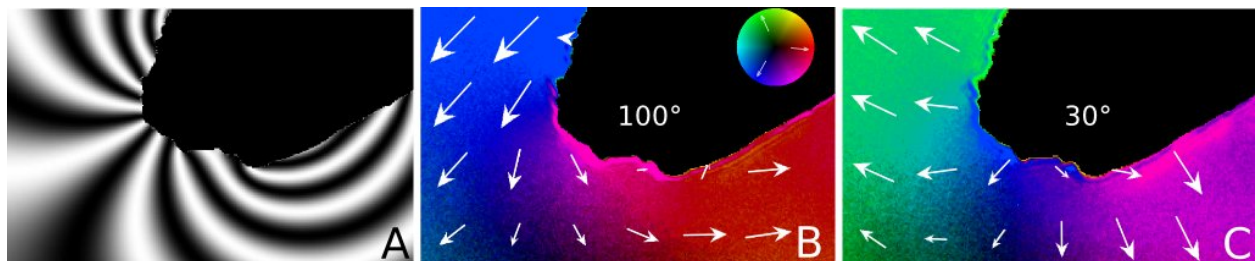
en utilisant les défectrices de tilt du microscope (inclinaison du faisceau par rapport à la normale), à la manière des clichés de champ sombre. Ainsi, le balayage est effectué non pas en modifiant la position du diaphragme dans le plan focal, mais en modifiant la position du faisceau relativement à celui-ci.

L'obtention de données quantitatives nécessite une très bonne connaissance des conditions expérimentales et plus particulièrement :

- L'axe des tilts du microscope relativement à l'image, doit être connu pour déterminer la projection de l'induction qui est sondée. En effet, comme présentée dans la Fig. II.1, l'image subit une rotation lors de son trajet dans la colonne. Il faut donc déterminer l'angle de la rotation intervenant entre le lieu où est produit le tilt, et le plan de l'image.
- La somme des images implique un alignement parfait de celles-ci les unes avec les autres. L'introduction d'un tilt peut, même avec des réglages de points pivots optimum, engendrer un léger "shift" (décalage) de l'image. Il peut aussi arriver que l'échantillon dérive quelque peu entre les différentes images. Aussi, toutes les images d'une même série devront être recalées avant d'être additionnées.
- L'évaluation de l'angle  $\beta$  (cf. Eq. II.6) au niveau du plan focal, permet enfin de remonter à l'induction magnétique traversée.

### iii *Rotation de l'image*

Lors de la formation de l'image, celle-ci subit une rotation le long de l'axe optique. Il est donc nécessaire de déterminer l'angle que forment les axes de tilt du faisceau avec les axes de l'image enregistrée sur la caméra CCD (horizontale et verticale). Nous avons pour cela monté une pointe MFM sur une grille TEM que nous avons cartographiée en DPC. Le champ magnétique rayonné par une telle pointe peut être simulé et permet ainsi de déterminer la rotation à effectuer pour retrouver la configuration magnétique des champs de fuite autour de la pointe (Fig. II.10).



**FIG. II.10:** **A** Simulation du champ rayonné par une pointe MFM présenté sous la forme de lignes de flux magnétiques ( $\cos \phi$ ). **B et C** Reconstruction de l'induction magnétique à l'aide d'une série DPC. L'angle indiqué sur les reconstructions est l'angle ajouté à chaque vecteur d'induction magnétique. Le code couleur est expliqué par le disque dans la première image (voir aussi plus loin dans ce manuscrit).

Une rotation de  $30^\circ$  permet donc de retrouver la distribution de l'induction magnétique.

### iv *Correction des images*

L'introduction d'un tilt (inclinaison) sur le faisceau électronique peut induire un shift (décalage) de l'image. Le réglage des points pivots permet habituellement de compenser cet effet indésirable. Mais la correction n'est généralement réalisée que pour conserver la zone d'observation, non pas pour obtenir des images alignées au pixel près.

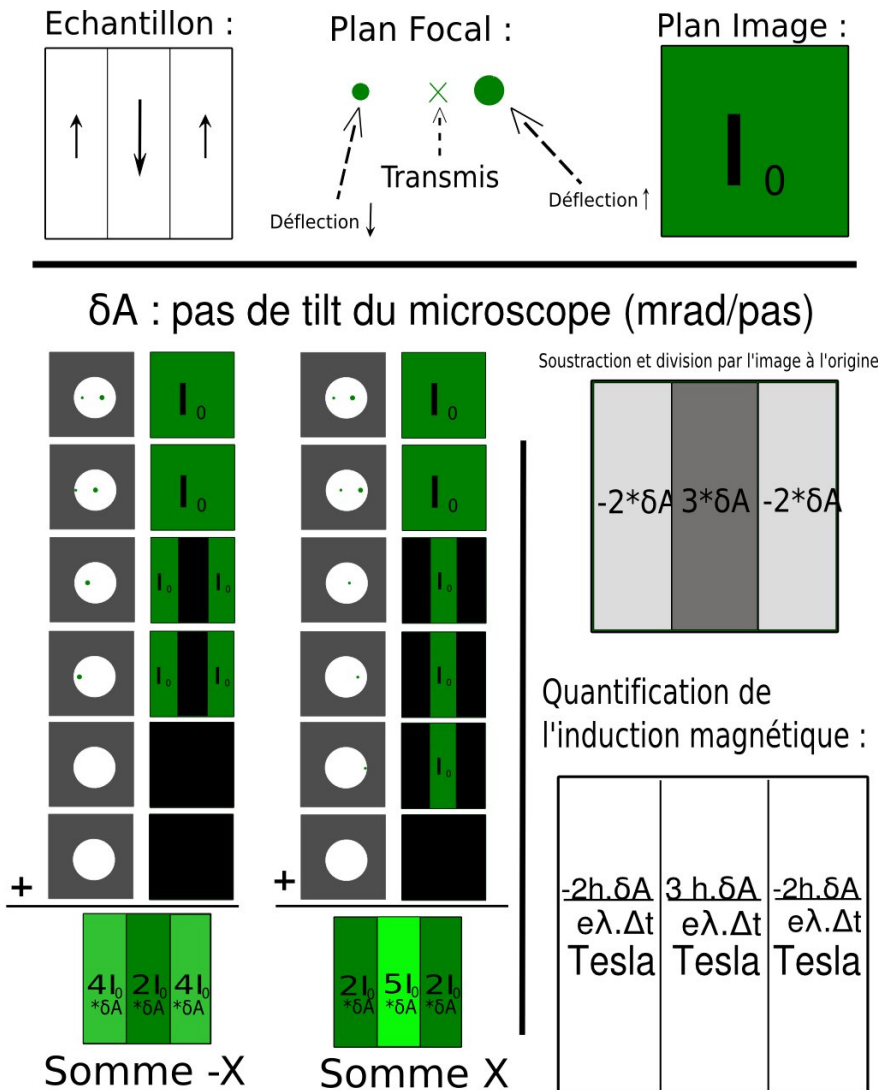
Nous avons mis en place deux outils de correction de ce shift : le premier est un moyen "hard"

effectué lors de l'acquisition. Nous utilisons les défectrices de projection pour compenser une majeure partie de ce décalage. Cette calibration n'est pas absolue, elle dépend de nombreux paramètres (astigmatisme, focalisation). Aussi, elle doit être effectuée à chaque modification d'un paramètre du microscope (et donc pour chaque nouvelle acquisition).

La deuxième correction est un moyen numérique. Le principe est une analyse de la fonction de corrélation des deux images à sommer. La position du maximum d'intensité dans la cross-corrélation correspond alors au décalage entre les deux images. La description des traitements d'images est longue et nous ne nous y attarderons pas ici ; nous renvoyons le lecteur à l'Annexe F. Néanmoins ces étapes de correction sont indispensables et critiques pour l'analyse.

**v Quantification des images**

Nous avons étudié la possibilité de quantifier les cartographies obtenues en DPC. Comme décrit sur la Fig. II.11, à chaque fois qu'un pixel est allumé dans une des images de la série d'acquisition, sa valeur dans la somme totale augmente de  $I_0$ . Ce  $I_0$  correspond à la valeur contenue dans le pixel

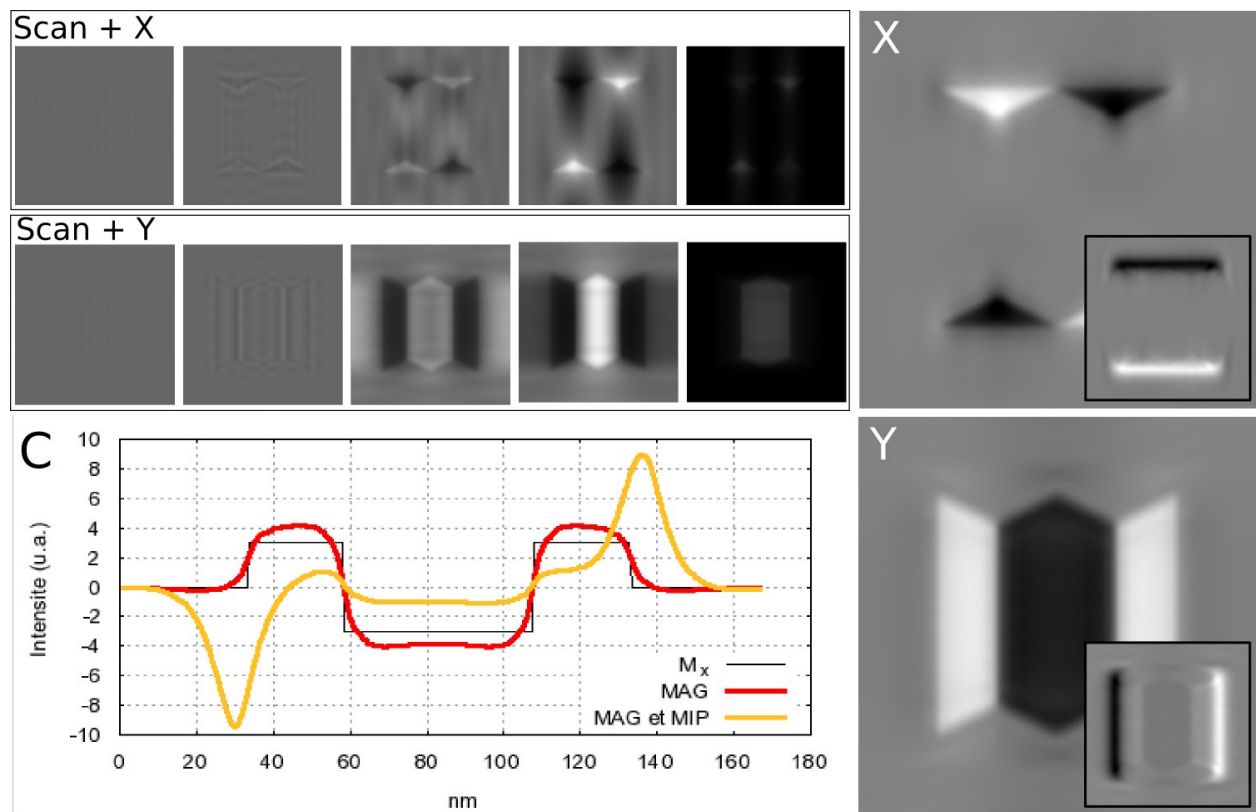


**FIG. II.11:** Schéma de principe de la quantification des cartographies obtenues par DPC. En haut, présentation d'un échantillon magnétique et son observation dans le plan focal et image. Colones de gauche : plans focal et image lors d'une acquisition DPC sur l'échantillon présenté au-dessus. Colone de droite : Résultat de l'acquisition DPC et quantification des valeurs.

lors d'un champ clair. Si ce pixel est allumé dans quatre images de la série, sa valeur finale, après addition, sera donc de  $4 \cdot I_0$ . Si dans la série opposée, la valeur après addition est différente ( $2 \cdot I_0$  dans la Fig. II.11) la soustraction des deux images somme donnera donc une valeur caractéristique au pixel (cette valeur est nulle si le pixel ne contient pas d'information magnétique). Cette valeur est relative à la déflexion subie par les électrons comptés dans le pixel. Pour quantifier directement l'induction magnétique traversée, en chaque point de l'image, il faut donc connaître le pas de tilt utilisé par le microscope en termes de radians.

La calibration du pas de tilt du faisceau électronique a été réalisée sur le JEOL 3010 avec un échantillon de Silicium  $\langle 110 \rangle$ . Nous avons calibré le tilt à l'aide des premiers angles de Bragg de la diffraction électronique, déterminée à l'aide de JEMS<sup>74</sup> (cf. Annexe D). Nous avons ainsi établi une calibration absolue de  $0,3 \mu\text{rad/pas}$ .

Cette valeur précise, ne reflète pas la vraie sensibilité de la technique (cette sensibilité absolue serait de  $0,6 \text{ nm.T}$  d'après l'Eq. II.6). En effet le faisceau transmis n'est pas ponctuel mais forme un disque du fait de la divergence du microscope. Ce disque s'étend dans notre cas, sur environ 10 pas de tilt, soit de l'ordre de la dizaine de  $\mu\text{rad}$ ; la mesure par DPC offre donc une sensibilité de l'ordre de la dizaine de  $\text{nm.T}$ .



**FIG. II.12:** Résultats de la reconstruction des composantes de l'aimantation par DPC. Les deux premières lignes (Scan +X et Scan +Y) présentent certaines images utilisées pour la reconstruction, prises pour diverses positions du diaphragme dans les deux directions. Le diaphragme utilisé est identique à celui utilisé en Fig. II.8, pour des positions situées entre 0 et  $0,15 \text{ nm}^{-1}$ . **X** et **Y** sont les deux composantes de l'induction magnétique reconstruites par la méthode DPC. En insert sont présentées les composantes calculées en ajoutant la contribution de la phase électrostatique et de l'amplitude. **C.** Comparaison entre les profils obtenus pour la composante Y sans et avec la contribution du potentiel interne, comparés à la composante utilisée pour définir le système.

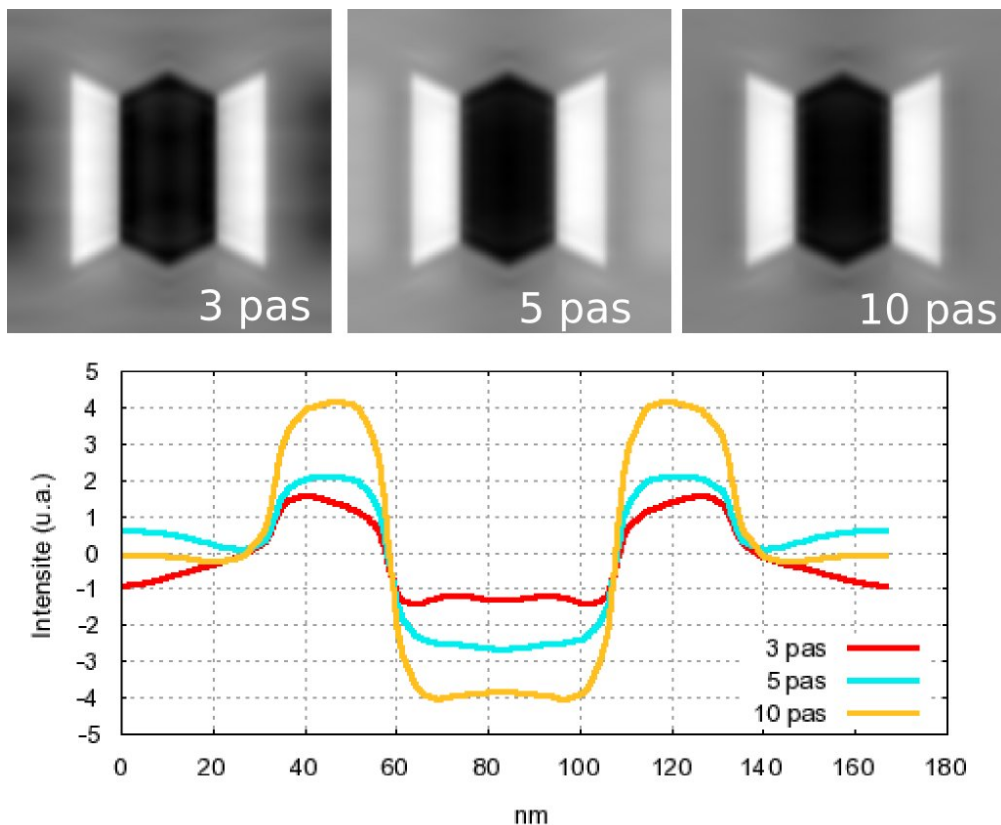
## vi Résultats de la simulation

La Figure II.12 présente le résultat de la simulation d'une acquisition DPC sur notre système modèle. La cartographie réalisée par DPC reproduit parfaitement l'induction magnétique de notre système d'étude. Cette reconstruction est légèrement perturbée au niveau des parois magnétiques et des bords de l'échantillon. Nous pouvons d'après cette simulation estimer la résolution spatiale inférieure à 10 nm.

Nous n'avons pas réalisé ici de mesures quantitatives sur ces clichés simulés. La quantification dépend avant tout du microscope utilisé. De plus, pour la simulation, ce n'est pas un tilt du faisceau que nous modifions, mais bien le diaphragme que nous déplaçons dans le plan focal.

La prise en compte de la composante électrostatique et de l'amplitude introduisent de forts contrastes liés aux variations de l'épaisseur. Mais contrairement aux contrastes de Foucault (Fig. II.8), on distingue ici très bien les variations de l'induction magnétique au sein de la structure (Fig. II.12-Y en insert). Le profil de la Fig. II.12-C montre que la reconstruction est effectivement altérée au niveau des bords de notre objet mais qu'au centre (entre 50 et 120 nm ici) l'induction est qualitativement bien reproduite par le DPC.

Il faut noter ici que l'absence de formules complexes permet d'effectuer tous les calculs dans l'espace réel. Tous les artefacts inhérents au calcul numérique n'interviennent pas pour la méthode de reconstruction par DPC. Nous le verrons dans les sections suivantes, c'est souvent un argument de poids à l'encontre des techniques de reconstruction de phase. Leur description mathématique, sans être très complexe, nécessite l'emploi d'approximations numériques qui introduisent parfois des artefacts de mesure difficiles à localiser dans la procédure de reconstruction.



**FIG. II.13:** Résultats DPC par simulation pour un nombre différent d'images utilisées pour le calcul. Les images du haut montrent la composante Y de l'aimantation, calculée pour un nombre différent d'image dans la série DPC. Le profil montre la comparaison de ces différentes acquisitions (description qualitative).

La Figure II.13 présente une comparaison du nombre de pas effectués pour l'acquisition DPC. Nous pouvons tout d'abord observer que le contraste des images augmente avec le nombre de pas. Ce n'est réellement qu'à partir de 10 images par série, que les variations de l'induction magnétique semblent parfaitement reconstruites. Nous pouvons l'observer au niveau du profil proposé en Fig. II.13. Pour un nombre d'images inférieur, la symétrie entre les domaines pointant vers le haut et vers le bas n'est pas respectée. Nous pouvons traduire ceci comme une augmentation de la sensibilité avec le nombre d'images prises dans la série.

Nous avons utilisé expérimentalement des pas de 20 images (allant parfois jusqu'à des séries de 50 images) pour obtenir un fort contraste. L'augmentation du pas permet de différencier des contributions magnétiques très proches l'une de l'autre. La reconstruction est par contre beaucoup plus sensible aux erreurs d'alignements entre les images. Une acquisition avec 50 images par série correspond ainsi à 200 images à recadrer entre elles avant de les additionner. Outre l'augmentation du temps d'acquisition et de calcul pour la correction, nous avons noté que dans ce cas, la reconstruction est largement dominée par les instabilités du microscope. Aussi, une telle acquisition doit être répétée plusieurs fois pour obtenir une description fidèle de l'induction de l'objet d'étude.

### vii Conclusions sur DPC

L'onde électronique diffracte sur les obstacles dans la colonne, que ce soit au niveau de l'échantillon ou le bord du diaphragme. La résolution spatiale envisageable avec cette technique est donc nécessairement inférieure à la résolution de la lentille utilisée comme objectif (quelques nm pour le JEOL 3010 où a été implémenté le DPC). Ceci nécessite en outre l'augmentation du nombre d'images prises dans une acquisition DPC pour s'affranchir au mieux de ces effets. Dans une zone d'épaisseur homogène, ces phénomènes n'empêchent pas d'obtenir des résultats satisfaisants. La principale source d'artefacts est la variation abrupte de l'épaisseur.

Nous avons par contre mis en évidence la qualité de la reconstruction, décrivant les domaines magnétiques avec une résolution de l'ordre de 10 nm. Le tableau II.1 résume les caractéristiques du DPC.

DPC	☺ Avantages	☹ Inconvénients
Implémentation	Approche géométrique, plus simple Pas de géométrie particulière de l'échantillon	Complexité d'implémenter le Mode Foucault Très sensible aux instabilités du microscope
Qualitatif	Très bonne sensibilité ajustable avec le pas de tilt Jusqu'à 10 $nm.T$	Résolution limitée, due aux interférences Environ 20 $nm$
Quantitatif	Quantification absolue de l'angle $\beta$ Artefacts dus au potentiel interne	Nécessite encore une validation expérimentale

TABLE II.1: Récapitulatif des principaux avantages et inconvénients du DPC.

Nous présentons maintenant les techniques dites interférométriques, où la diffraction du faisceau électronique lors de la rencontre avec un objet, magnétique ou non, est la base de la reconstruction de l'information de phase.

## b Résolution de l'équation de transport d'intensité

Partant de la description de la formation d'une image dans un microscope électronique, nous pouvons remonter au déphasage de l'onde. Cette méthode permet de reconstruire cette phase à la sortie de l'objet d'étude malgré sa disparition dans l'image enregistrée.

### i Description mathématique

La méthode décrite ici a pour la première fois été formulée par David Paganin et Keith Nugent<sup>75</sup>, comme une technique dite non-interférométrique. Pourtant, sans l'interférence prenant naissance dans les contrastes de Fresnel, cette technique ne pourrait exister<sup>76</sup>.

En reprenant l'équation de la fonction de Transfert du Microscope (Eq. II.3), on remarque qu'en l'absence de diaphragme elle peut s'écrire sous la forme :

$$T(\vec{q}) = e^{\gamma \cdot q^2}$$

où  $\gamma = i\pi\lambda z + \frac{(\theta_c z)^2}{4\ln 2}$  représente les différentes contributions en d'ordre 2 (en  $q$ ) : la défocalisation et la divergence du faisceau (les autres aberrations d'ordre supérieur sont négligées). On peut donc écrire, considérant des petites valeurs de  $\gamma$  (petites valeur de la défocalisation et de la divergence) :

$$T(\vec{q}) \propto 1 - \gamma q^2$$

L'expression de l'intensité (cf Eq. II.4) appliquée à une fonction d'onde  $\Psi = Ae^{i\phi}$  donne alors :

$$I(\vec{r}) = |\Psi(\vec{r}) - \gamma \mathcal{F}^{-1} [q^2 \Psi(\vec{q})]|^2$$

où  $\mathcal{F}^{-1}$  dénote la transformation inverse de Fourier. Si la multiplication par  $q^2$  dans l'espace de Fourier est équivalente à un Laplacien dans l'espace direct on peut écrire :  $2\pi i q \iff \nabla$  et  $\nabla^2 \iff -4\pi^2 q^2$ . On peut alors développer la formule précédente uniquement dans l'espace réel :

$$I(\vec{r}) = \left| \Psi(\vec{r}) + \frac{\gamma}{4\pi^2} \nabla^2 \Psi(\vec{r}) \right|^2$$

On retrouve ici l'expression d'une figure d'interférence entre deux ondes que nous aborderons dans la prochaine section sur l'holographie. En explicitant le Laplacien (le calcul complet est décrit en ref.<sup>59</sup> en négligeant les termes d'ordre supérieur à  $\lambda^2$ ) on obtient :

$$I(\vec{r}) = A^2 - \frac{\lambda z}{2\pi} \nabla \cdot (A^2 \nabla \phi) + \theta_c^2 z^2 [A \nabla A - A^2 (\nabla \phi)^2]$$

On trouve dans cette expression deux termes dépendants de la position  $z$  de l'onde sur l'axe optique : un terme impair et un terme pair. En évaluant l'intensité pour deux valeurs opposées par rapport au plan images ( $z = \pm \Delta f$ ) on peut alors s'affranchir de 2 termes dans l'expression précédente :

$$I(\vec{r}, \Delta f) - I(\vec{r}, -\Delta f) = -\frac{\lambda \Delta f}{\pi} \nabla \cdot (A^2 \nabla \phi)$$

où l'on retrouve l'expression de la dérivée de l'intensité le long de l'axe optique ainsi que l'intensité exprimée au plan  $z = 0$  par  $I(r, 0) = A^2$ . On peut d'ores et déjà noter que le terme relatif à la divergence de l'onde électronique a disparu. En prenant une notation plus compacte on obtient :

$$\left. \frac{\partial I}{\partial f} \right|_{z=0} = -\frac{\lambda}{2\pi} \nabla \cdot (I(r, 0) \nabla \phi)$$

Cette équation a été appelée *Transport-of-Intensity Equation*<sup>77</sup> par Michael Teague qui l'a pour la première fois formulée.

Elle est uniquement valable pour des petites valeurs de la défocalisation  $\Delta f$ . Ce *petit défocus* a été longuement discuté<sup>76</sup> sans aboutir à un consensus. Pour l'étude d'un matériau magnétique présentant des domaines magnétiques alternés, de période 100 nm, comme dans notre exemple, l'approximation de  $\gamma \ll 1$  implique un défocus inférieur à 1,6 nm<sup>76</sup>. Cette valeur est amplement suffisante pour les défocalisations que nous utilisons (de l'ordre du  $\mu\text{m}$ ). Il est généralement admis que la défocalisation utilisée doit être la plus faible possible permettant d'observer les contrastes magnétiques.

La solution formelle de cette équation est donnée par<sup>75</sup> :

$$\phi(r_{\perp}^{\vec{r}}) = -k \nabla_{\perp}^{-2} \left\{ \nabla_{\perp} \left[ \frac{1}{I(r_{\perp}^{\vec{r}})_{z=0}} \nabla_{\perp} \nabla_{\perp}^{-2} \left( \frac{\partial I}{\partial f} \right)_{z=0} \right] \right\} \quad (\text{II.9})$$

où  $\nabla_{\perp}^{-2}$  dénote le laplacien inverse dans le plan  $(x, y)$  et  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  est le vecteur d'onde. Si l'intensité au plan image est uniforme on peut réduire cette expression à<sup>78</sup> :

$$\phi(r_{\perp}^{\vec{r}}) = \frac{-k}{I_0} \nabla^{-2} \left( \frac{\partial I}{\partial f} \right)_{z=0} \quad (\text{II.10})$$

De nombreuses méthodes ont été proposées pour résoudre cette équation, certaines réalisées dans l'espace réel<sup>79</sup> et nécessitant de grandes précautions, notamment par la définition de conditions aux limites nécessaires à la résolution de l'équation de Poisson en  $\nabla^2 \phi$ . Une méthode, beaucoup plus simple, utilise l'espace de Fourier<sup>59</sup>. Des précautions sont néanmoins à prendre ici aussi, du fait de la périodisation utilisée par l'algorithme FFT\*.

Cette technique est limitée sur un point. La phase n'est définie que si, *et seulement si*, l'intensité est non nulle au point considéré.

Nous utiliserons pour notre part la méthode générale, sans hypothèse sur l'uniformité de l'intensité pour une défocalisation nulle.

Pour effectuer cette reconstruction nous utilisons l'espace de Fourier. Il faut dans ce cas procéder à quelques vérifications sur le fonctionnement de la transformée de Fourier du logiciel. En effet, suivant l'algorithme FFT utilisé, il est possible que les variables dans l'espace réciproque (les fréquence spatiales) soit définies à un facteur  $2\pi$  près.

$$\phi(r_{\perp}^{\vec{r}}) = -\frac{2\pi}{\lambda} \mathcal{F}^{-1} \left\{ \frac{1}{q_{\perp}^*} \cdot \mathcal{F} \left[ \frac{1}{I_0(\vec{r})} \mathcal{F}^{-1} \left\{ \frac{1}{q_{\perp}} \cdot \mathcal{F} \left[ \frac{I_{\Delta f} - I_{-\Delta f}}{2\Delta f} \right] \right\} \right] \right\} \quad (\text{II.11})$$

Ici,  $q_{\perp}^*$  est le conjugué de  $q_{\perp}$ . Cette formulation permet d'évaluer aisément l'opérateur  $\nabla_{\perp}^{-2} \cdot \nabla_{\perp}$  et sa permutation  $\nabla_{\perp} \cdot \nabla_{\perp}^{-2}$ . Elle permet également de conserver l'utilisation de la notation complexe dans tous nos calculs, malgré le passage par l'espace réciproque, lui aussi à valeurs complexes.

Nous avons aussi implémenté dans nos logiciels de simulation et de reconstruction, des outils de symétrisation<sup>80</sup>, ou de zéro padding, qui permettent de réduire les effets de bord lors du passage dans l'espace réciproque.

## ii Implémentation expérimentale

L'obtention de l'information de phase est donc assujettie à la connaissance de deux inconnues : une figure d'intensité au plan considéré et la dérivée de cette intensité le long de la trajectoire, estimée dans ce même plan. Il nous faut pour cela obtenir quatre informations :

- une image à la *focalisation* (intensité dans le plan image)
- une image en *sur-focalisation*
- une image en *sous-focalisation*

\*Voir aussi Glossaire : [Fast Fourier Transform](#)



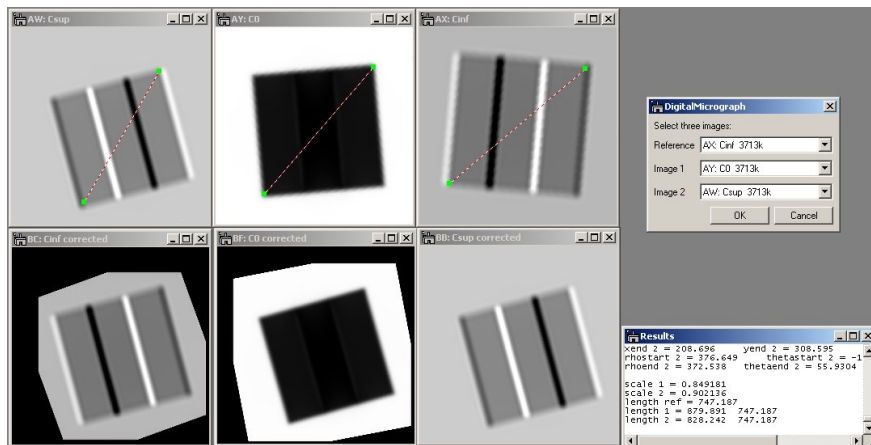
- la valeur de la *défocalisation* utilisée, pour estimer quantitativement la dérivée.

Expérimentalement, ceci implique de prendre des images pour différentes valeurs de  $\Delta f$ . Le changement de ce paramètre provoque, comme pour le tilt du faisceau en DPC, un décalage entre les images. Il est en outre nécessaire ici de corriger une rotation et une variation de grandissement induites par le changement de plan dans la colonne (comme il a été présenté sur la Fig. II.1).

Nous avons tout d'abord implémenté une correction automatique. La détermination des trois facteurs de correction (décalage, grandissement, rotation) était réalisée de façon numérique (cf. Annexe F).

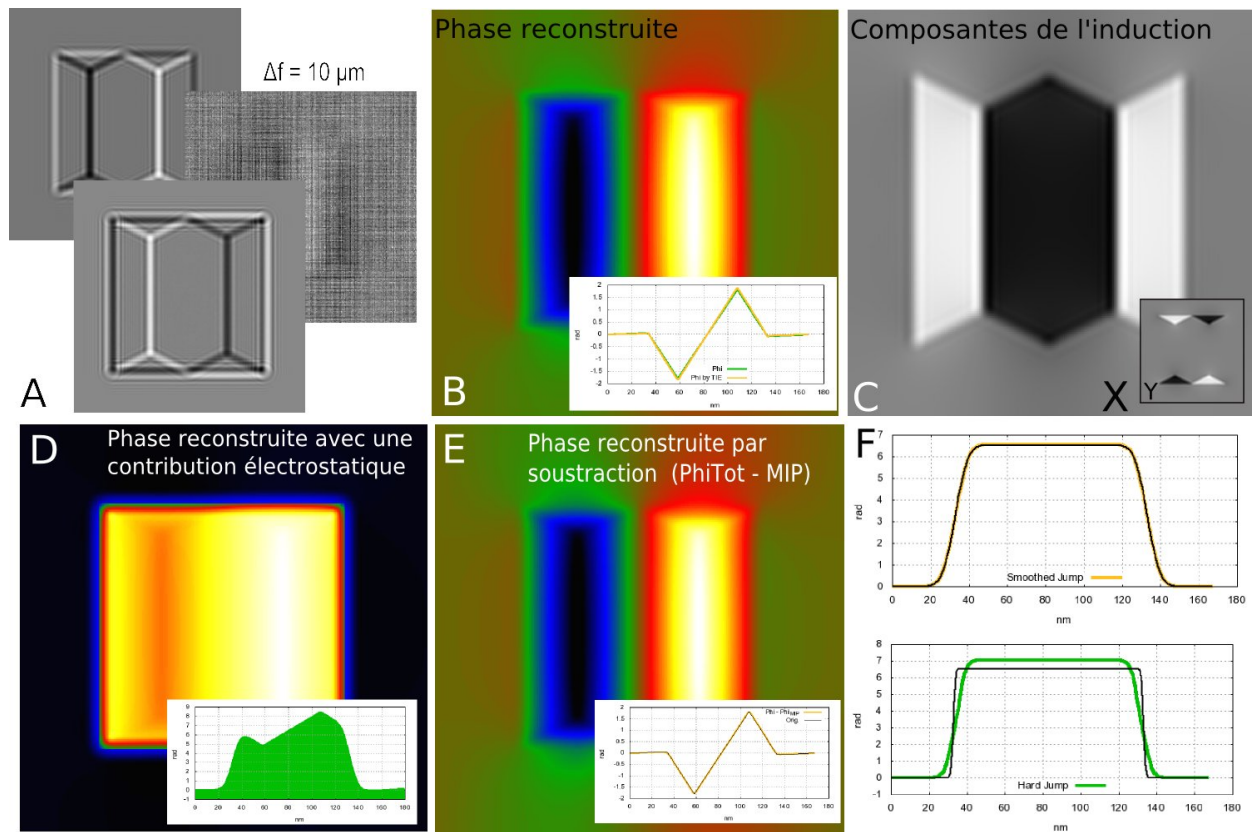
Nous nous sommes alors heurtés à un problème : le centre des transformations. La variation de grandissement par exemple, est une homothétie, et est donc définie par deux paramètres : un facteur de grandissement et un centre de transformation (de façon identique pour la rotation, avec un angle et un centre de rotation). Or, une rotation entre deux images ne prend pas nécessairement naissance au centre de ces images. L'algorithme de correction automatique étant basé sur une transformation Log-Polaire de centre fixé, il nous est apparu pour l'instant plus judicieux de réaliser cette correction manuellement.

Cette correction est alors définie par des lignes que l'utilisateur dispose sur chaque image en se repérant sur des défauts de l'image (cf. Fig. II.14). L'analyse de ces lignes permet alors d'effectuer rapidement toutes les corrections nécessaires. Expérimentalement, suivant la défocalisation utilisée, des corrections en angle supérieures à  $10^\circ$ , et des facteurs de grandissement de l'ordre de 0,9 sont couramment obtenus.



**FIG. II.14:** Présentation de la correction des images expérimentales pour la méthode TIE, par l'utilisation de lignes disposées par l'utilisateur sur des défauts de la zone.

En plus de ces corrections spatiales, il faut mettre en oeuvre une correction en intensité<sup>81</sup>. En effet, la modification importante de la défocalisation s'accompagne de l'étalement du faisceau électronique. Cet étalement (resp. condensation) du faisceau engendre une diminution (resp. augmentation) du nombre d'électrons reçus par chaque pixel de la caméra CCD. Nous avons proposé une correction de l'intensité des trois images prises le long de l'axe optique. La totalité du signal disponible dans nos images (*i.e.* la somme de tous les pixels) est ainsi associée un facteur, pondérant l'intensité mesurée dans chacune d'elles.



**FIG. II.15:** Résultats de la reconstruction focale par la TIE. **A** Les trois images utilisées pour la reconstruction, la valeur de la défocalisation utilisée est indiquée. **B** Phase reconstruite à l'aide des trois images en A. Le profil montre la quantification des valeurs et la comparaison avec la phase originale. **C** Composantes de l'induction déduites de l'image de phase. **D** Phase reconstruite pour l'ajout d'une contribution électrostatique et d'un terme d'amplitude de l'objet. **E** Soustraction de la contribution purement électrostatique (reconstruction non affichée) à l'image obtenue pour la reconstruction (D). On retrouve la contribution purement magnétique. **F** Comparaison de la reconstruction de la composante purement électrostatique pour 2 types de bord : abrupt et lissé.

### iii Résultats de la Simulation

Le résultat obtenu sur notre système modèle est présenté dans les figures suivantes (cf Figs. II.15 et II.16).

Les trois images utilisées pour la reconstruction sont présentées en Fig. II.15-A. La phase reconstruite (Fig. II.15-B) est en accord avec la phase magnétique calculée pour notre système et ce, de manière quantitative. On détermine ensuite, à partir de cette phase, une cartographie magnétique de l'induction magnétique. Les composantes de l'induction sont construites à partir du vecteur orthogonal au gradient de la phase. En effet,  $\vec{B} = \text{rot}(\vec{A})$  et  $\phi \propto A_z$  donc il vient immédiatement :

$$\begin{aligned} B_x &\propto \frac{\partial \phi}{\partial y} \\ B_y &\propto -\frac{\partial \phi}{\partial x} \end{aligned} \quad (\text{II.12})$$

Ces expressions sont ensuite quantifiées à l'aide l'équation d'Aharonov-Bohm (cf. Eq II.7).

Nous avons ensuite simulé la reconstruction par la TIE sur un objet avec l'amplitude définie dans la section précédente et les contributions magnétiques et électrostatiques à la phase. Le résultat est

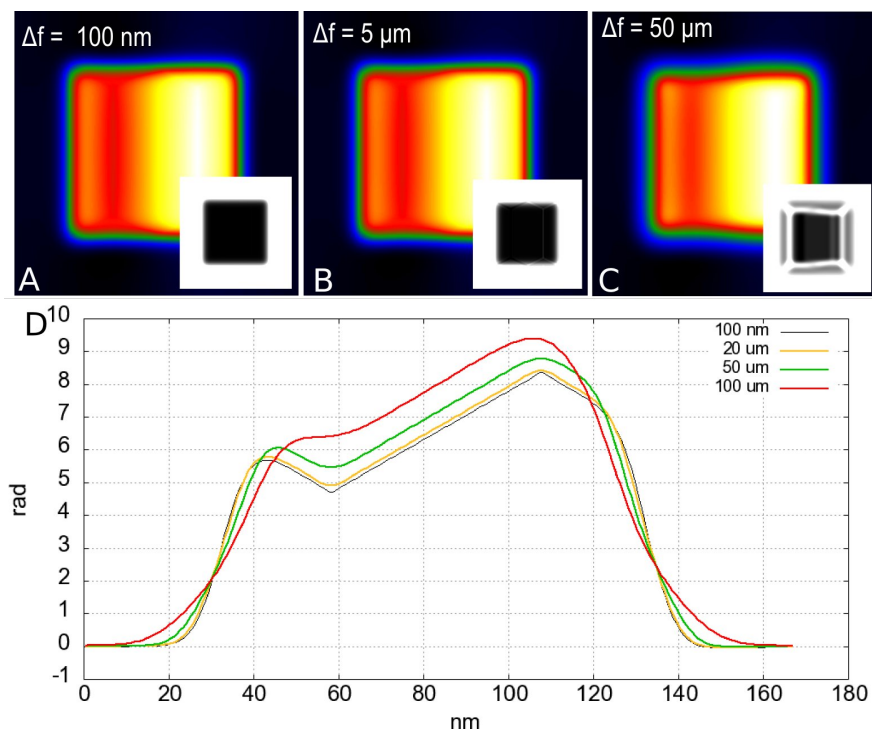
présenté en Fig. II.15-D. Nous voyons tout d'abord que la phase reconstruite présente deux types de variations : une due au MIP, représentant un créneau, et l'autre due à la composante magnétique et décrite en Fig. II.15-B. L'information d'amplitude est d'ores et déjà éliminée de nos résultats.

Une manière de retrouver l'information purement magnétique lors de l'utilisation de la reconstruction de phase est de déterminer par la mesure, la valeur du déphasage induit par le potentiel interne seul. Expérimentalement, cette valeur peut par exemple être obtenue en saturant l'échantillon pour rendre l'aimantation parallèle au trajet des électrons. La contribution magnétique au déphasage devient alors négligeable. Nous aborderons, au chapitre III, d'autres méthodes pour réaliser cette soustraction.

Une fois la valeur de ce déphasage électrostatique connu, on peut alors la soustraire de l'information totale pour obtenir la contribution purement magnétique (Fig. II.15-E). De cette manière, les valeurs obtenues pour le déphasage sont parfaitement quantitatives, en accord avec les données initiales.

Comme nous pouvons le voir sur la Fig. II.15-F, la qualité de la reconstruction du MIP dépend fortement du saut de phase produit par l'objet. Si une phase magnétique ne peut être a priori abrupte (continuité du potentiel vecteur), celle due au potentiel interne peut parfaitement correspondre à une marche, de plusieurs radians (comme dans le cas de notre objet). Nous avons donc étudié la capacité de la TIE à reconstruire ce type de sauts. La Fig. II.15-F présente deux reconstructions pour deux types de profil de notre système. Dans un cas les bords sont très abrupts, dans un autre ils sont exagérément lissés. On observe ainsi que pour un profil présentant des sauts de phase trop importants, la reconstruction par la TIE s'écarte du profil original. Par contre si ces variations sont suffisamment faibles, la reconstruction est parfaitement quantitative. M. Beleggia a discuté plus profondément de cette question <sup>76</sup>.

La défocalisation joue aussi un rôle non négligeable dans la qualité des reconstructions (Fig. II.16-



**FIG. II.16:** Comparaison de la résolution obtenue pour différentes valeurs de la défocalisation. **A, B, C** Reconstruction pour des contributions magnétiques seules pour trois valeurs différentes de la défocalisation. Les inserts sont les clichés de Fresnel utilisés pour la reconstruction. **D** Profils comparés pour différentes valeurs de la défocalisation.

C). On remarque qu'à partir d'une certaine valeur de celle-ci, la qualité de la reconstruction s'altère rapidement (dans notre cas, au-dessus de  $20 \mu m$ ). Et ce n'est que pour des défocalisations proches du  $\mu m$  que la reconstruction semble correctement réalisée. Pour des valeurs trop élevées de la défocalisation, on retrouve le problème décrit sur la figure précédente. La phase reconstruite est sur-estimée. Ceci est notamment dû à la perte de l'information spatiale (voir les contrastes de l'image de Fresnel à  $50 \mu m$  en Fig. II.16-C).

Par contre, comme on peut l'observer sur les clichés de Fresnel associés aux reconstructions (Fig. II.16-A et B), il devient difficile voire impossible de distinguer les contrastes de Fresnel magnétiques pour des valeurs trop faibles de la défocalisation. Expérimentalement, ceci reviendrait à effectuer la reconstruction "à l'aveugle", sans réellement savoir où se situent les contrastes de Fresnel.

Cette remarque est très importante pour la reconstruction par TIE : sensibilité et résolution spatiale sont deux paramètres liés. Le premier peut ainsi s'ajuster au détriment du second. On pourra ainsi déterminer une configuration magnétique à très faible induction (inférieure au  $nm.T$ ), en augmentant la défocalisation mais ceci implique une diminution la résolution spatiale (mais aussi en perdant l'aspect quantitatif).

Comme présenté lors du développement mathématique, la divergence n'a pas d'influence sur la reconstruction par la TIE dans la gamme des petites défocalisations où l'on établit l'équation de transport de l'intensité.

#### iv Conclusion sur la TIE

Le tableau II.2 présente les mêmes comparaisons que celles proposées pour la méthode DPC, résumant les différents atouts de cette méthode d'imagerie magnétique.

TIE	☺ Avantages	☹ Inconvénients
Implémentation	Acquisition de seulement 3 images Obtention rapide de l'information de phase	Approche mathématique complexe Corrections sur les images à mener avec précaution
Qualitatif	Sensibilité ajustable ... au Quelques $nm.T$	détriment de la résolution Environ 10 nm
Quantitatif	Quantification automatique des images	Problème lié à la forme des objets étudiés (bords abrupts) Nécessite de connaître la défocalisation.

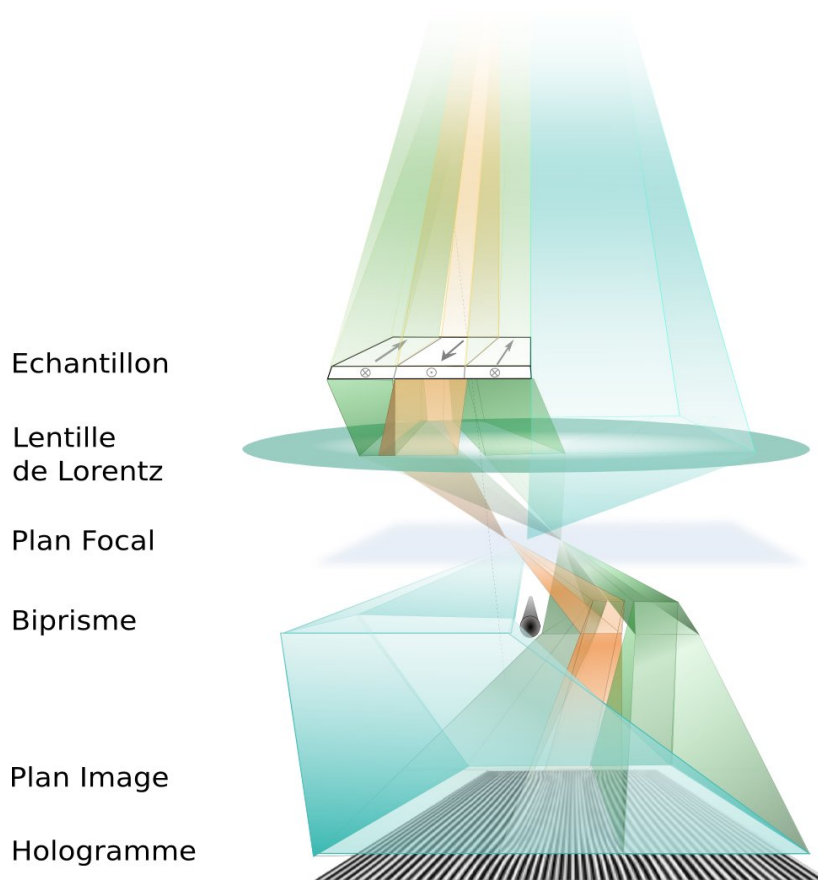
**TAB. II.2:** Récapitulatif des principaux avantages et inconvénients de la méthode de reconstruction par la TIE.

Nous allons maintenant aborder une autre technique de reconstruction de phase. L'holographie, plus ancienne que la résolution de la TIE, fait intervenir une interférométrie "classique", dans le sens où c'est d'une figure d'interférence qu'est extraite la phase.

### c Holographie électronique

#### i Introduction

L'holographie électronique est une des premières techniques qui a permis de déterminer intégralement le front d'onde en microscopie (amplitude *et* phase). Cette technique, mise au point par Dennis Gabor (1900-1979), a d'abord été théorique<sup>82</sup>. Alors nommée *Reconstruction par front d'onde*, elle



**FIG. II.17:** Description schématisée du chemin des électrons pour l'acquisition d'un hologramme en holographie *out-of-axis*. La superposition des deux faisceaux crée un réseau de franges d'interférences (simulation).

a été pensée par Gabor comme permettant d'augmenter très rapidement la résolution de la microscopie électronique. Mais l'holographie a d'abord pris son essor dans la microscopie photonique, et elle n'a pu être implémentée en microscopie électronique qu'avec l'apparition de sources suffisamment cohérentes (les canons FEG).

Le principe de l'holographie est de faire interférer un faisceau contenant l'information (onde *objet*) avec un faisceau n'ayant traversé que le vide (onde *référence*). L'interférence crée un réseau de franges correspondant à la rencontre des maxima et minima des deux ondes.

De nombreuses méthodes pour obtenir un faisceau de référence se sont développées<sup>83</sup> : une méthode *in-line* qui réalise une décomposition de l'onde avant l'échantillon<sup>84</sup>, ou l'utilisation d'un cristal parfait pour réaliser la figure d'interférence<sup>85</sup>, ou encore l'utilisation récente de la technique STEM pour réaliser des hologrammes<sup>86</sup>. La méthode de reconstruction via la TIE est aussi régulièrement appelée holographie *in-line*. L'holographie *out-of-axis*<sup>87</sup> (Fig. II.17) consiste à faire interférer le faisceau électronique traversant l'échantillon avec une autre partie de celui-ci, traversant un trou. Ces deux parties sont ensuite superposées par l'intermédiaire d'un biprisme de Moellenstedt<sup>88,89</sup>, fil fin de quelques  $\mu\text{m}$  de diamètre recouvert d'un métal et porté à un potentiel d'une centaine de volts. La taille de la zone de recouvrement est proportionnelle à la tension appliquée (plus le potentiel est important, plus la zone est large), qui définit dans le même temps, l'écart entre les franges d'interférence (plus le potentiel est important, plus l'écart entre les franges est faible).

## ii Reconstruction de la phase

L'holographie permet de retrouver l'information de phase qui se trouve dans les variations de la figure d'interférence. En termes mathématiques, l'onde électronique est décrite entièrement (amplitude et phase) autour de la fréquence spatiale de ces franges.

Cette fois-ci, deux fonctions d'onde différentes arrivent au niveau du plan image où l'on va calculer la figure d'intensité :

$$I(\vec{r}) = |\Psi_{obj.}(\vec{r}) \otimes T(\vec{r}) + \Psi_{ref.}(\vec{r}) \otimes T(\vec{r})|^2$$

où la fonction d'onde  $\Psi_{obj.} = A(\vec{r})e^{i\phi_{obj}(\vec{r})}$  est l'onde qui a traversé l'échantillon. La fonction  $\Psi_{ref.} = e^{2i\pi\vec{r}\cdot\vec{q}_h}$  est une fonction n'ayant subit, au cours de sa trajectoire, qu'un gradient de déphasage  $\vec{q}_h$  dû au champ électrique produit par le biprisme d'amplitude constante (comme pour une déflexion magnétique). En réalité les deux fronts d'onde subissent un gradient opposé en passant de part et d'autre du biprisme. Pour plus de simplicité dans la modélisation, on considère un gradient de phase deux fois plus important pour l'onde référence, l'onde objet restant inchangée. On peut alors exprimer la figure d'intensité par :

$$I(\vec{r}) = A^2(\vec{r}) + 1 + 2A(\vec{r})\cos(\phi(\vec{r}) + 2i\pi\vec{r}\cdot\vec{q}_h)$$

On distingue dans cette expression trois termes : ,

- un terme d'intensité de l'onde objet  $A^2(\vec{r})$
- un terme d'intensité de l'onde de référence 1
- un terme fréquentiel où se mêlent la phase de l'objet et le terme d'interférence.

En passant dans l'espace de Fourier, on décompose les valeurs de l'image en fréquences et on sépare la dernière contribution des deux premières :

$$\mathcal{F}[I(\vec{r})] = \delta(\vec{q}) \otimes \mathcal{F}[1 + A^2(\vec{r})] + \delta(\vec{q} + \vec{q}_h) \otimes \mathcal{F}[A(\vec{r})e^{i\phi(\vec{r})}] + \delta(\vec{q} - \vec{q}_h) \otimes \mathcal{F}[A(\vec{r})e^{-i\phi(\vec{r})}]$$

où les termes sont convolués par des fonctions de Dirac ( $\delta(\vec{q})$ ) correspondant aux pics centrés sur les fréquences 0,  $\vec{q}_h$  et  $-\vec{q}_h$ .

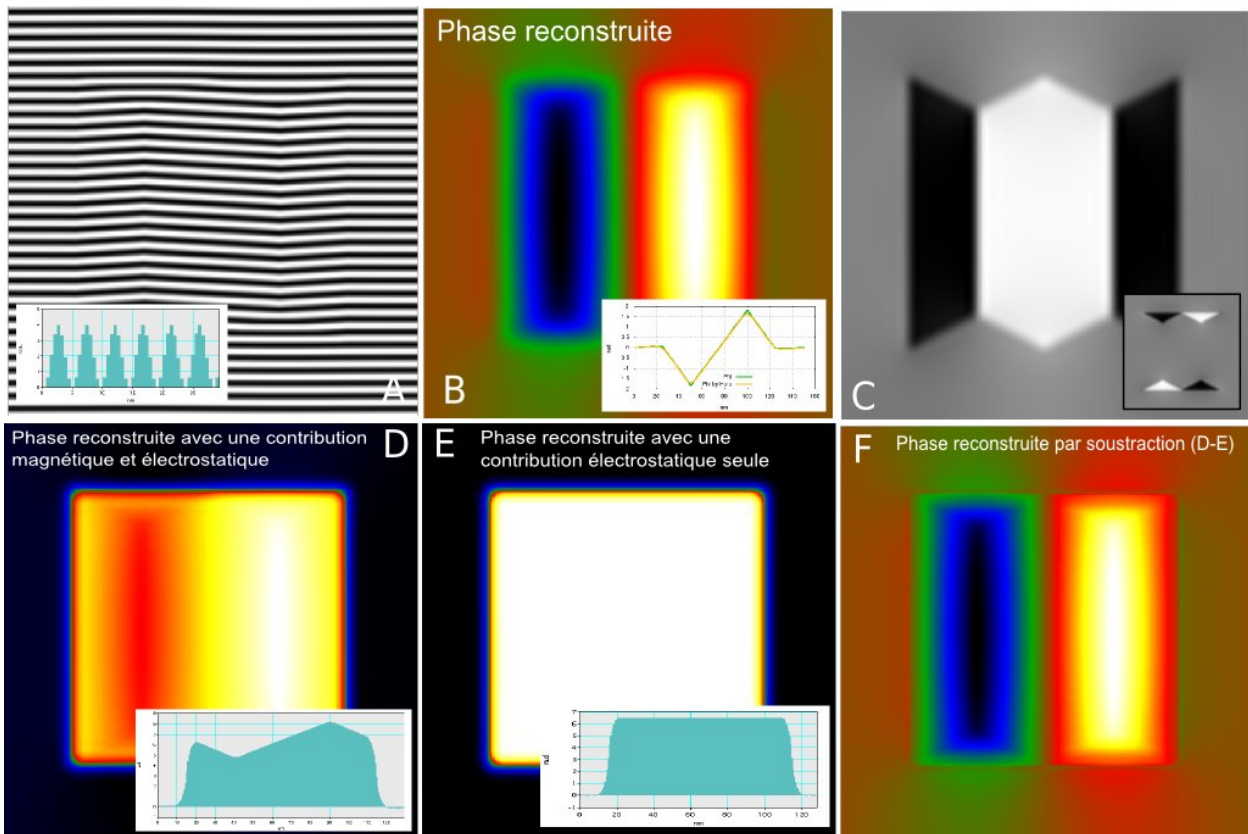
De cette expression nous déduisons que l'intensité de l'image (qu'on pourra désormais appeler hologramme) se décompose, dans l'espace de Fourier en trois pics : un pic central contenant l'information habituellement obtenue en microscopie électronique et deux pics (les *side-bands*) situés de part et d'autre de ce pic central. Pour récupérer l'information d'onde totale, il faut recentrer l'une de ces *side-bands*, en masquant les informations provenant de l'autre *side-band* et du pic central.

Il est donc évident à ce moment, que la fréquence des franges joue un rôle prépondérant dans la qualité de la reconstruction. Une interfrange très faible, va "expulser" les *side-bands*, loin du pic central, et donc rendre plus facile la séparation de l'information entre la *side-band* et le pic central. La taille du masque utilisé pour cacher les autres informations dans l'espace réciproque est directement liée à la résolution de la phase reconstruite. Un masque incluant peu de fréquences spatiales (de petite taille dans l'espace de Fourier) ne permettra pas de résoudre des variations rapides de la phase. Au contraire, un grand masque engendrera une augmentation du bruit dans l'image (porté par les hautes fréquences) tout en permettant de décrire plus précisément l'onde objet. Cette taille est principalement limitée par l'éloignement des *side-bands* du pic central.

Nous avons couramment utilisé comme taille de masque, un rayon équivalent à la moitié de la distance entre pic central et *side-band* (on peut aussi se référer à la Fig. II.19).

## iii Résultats de la simulation

La Figure II.18 présente les mêmes tests que ceux réalisés pour les deux techniques précédentes. L'holographie nous permet d'obtenir un résultat très proche des données initiales. Contrairement au problème abordé avec la TIE, la quantification est réalisée quelque soit la pente utilisée pour



**FIG. II.18:** Résultats de l'holographie en simulation. **A** Hologramme obtenu par simulation pour une phase purement magnétique. L'interfrange est de 4,8 nm. **B** Phase reconstruite pour une contribution magnétique seule. Le profil montre la comparaison avec la phase d'origine. **C** Gradient de la phase dans deux directions perpendiculaires, permettant d'obtenir les composantes de l'induction magnétique. **D** Phase reconstruite pour une contribution électrostatique et magnétique. **E** Phase reconstruite pour une contribution purement électrostatique. **F** Soustraction de la contribution électrostatique (E) à l'image obtenue pour la reconstruction D. On retrouve la contribution purement magnétique.

décrire l'objet. La soustraction n'induit presque aucun artefact dans la contribution magnétique (Fig. II.18-D et E).

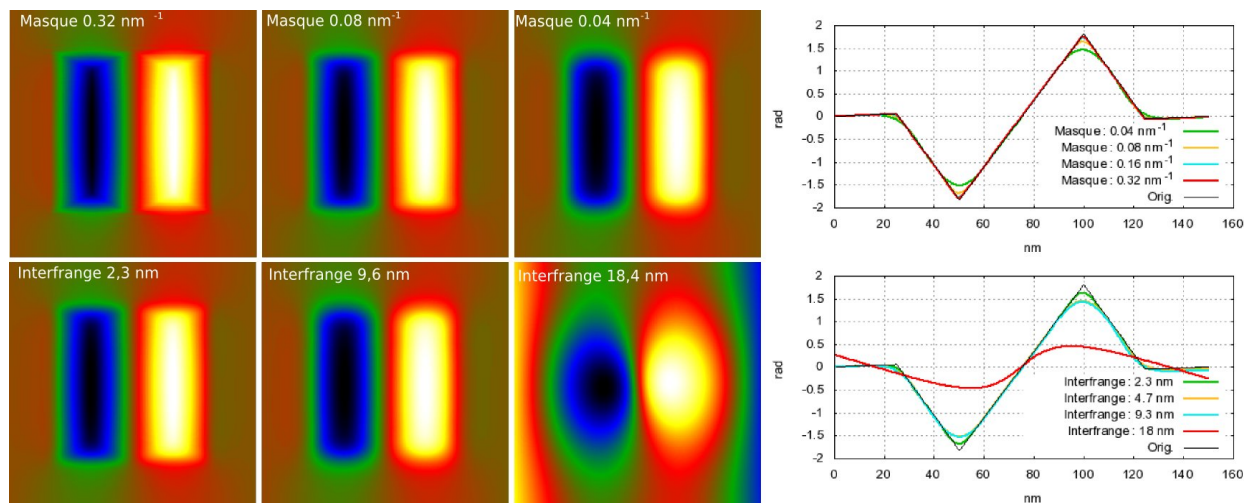
Nous avons réalisé une dernière étude par simulation pour valider notamment les concepts décrits lors de la présentation de l'holographie sur la taille de l'interfrange et la taille du masque.

La Fig. II.19 présente des reconstructions pour différentes tailles de masque et d'interfranges. Plus ce masque est petit, plus les variations de phase sont lissées (mais plus les fréquences spatiales élevées, porteuses de bruit, seront coupées). À l'inverse, la résolution obtenue sur la phase augmente avec la taille du masque.

L'étude proposée sur la taille de l'interfrange confirme qu'elle définit la résolution que l'on peut atteindre lors de la reconstruction. Il faut noter à ce niveau que la taille de l'interfrange est liée à deux paramètres expérimentaux limitants :

- La taille du pixel du capteur CCD
- La tension appliquée au biprisme.

En effet, la sélection de l'interfrange s'accompagne d'une variation du champ de vue. Plus le potentiel appliqué au biprisme est important, plus le champ de vue augmente et plus l'interfrange diminue, et vice-versa. Il faut donc en tout temps trouver un compromis entre une zone de recouvrement



**FIG. II.19:**  $1^{ere}$  ligne Comparaison de la résolution obtenue pour différentes tailles de masques utilisés pour la reconstruction. L'interfrange est de 2,3 nm.  $2^{eme}$  ligne Comparaison de la résolution obtenue pour différents interfranges.

suffisamment large, et un interfrange détectable par la CCD. On peut alors définir la sensibilité de la technique en mesurant le contraste de l'hologramme. Un fort contraste ( $\sim 15\%$ ) permettra d'obtenir une sensibilité de l'ordre de 5 nm.T.

Le champ de vue accessible avec l'holographie est ainsi restreint à des zones inférieures au micromètre, tout en nécessitant un trou pour laisser passer l'onde de référence. Le champ de vue est en fait principalement limité par la nécessité de pouvoir échantillonner correctement l'hologramme. Il faut par exemple un minimum de deux pixels par période d'interfrange pour pouvoir effectuer la reconstruction.

Holographie	☺ Avantages	☹ Inconvénients
Implémentation	Reconstruction facilitée par les méthodes numériques Sélectivité sur la résolution spatiale par le choix de l'interfrange	Géométrie de l'échantillon très particulière (trou) Champs de vue limités ( $< 2 \mu\text{m}$ )
Qualitatif	Très belles images obtenues rapidement  Résolution de l'ordre du nanomètre Sensibilité de l'ordre de celle du DPC	Beaucoup de paramètres ajustables, rendant la reconstruction parfois difficile Nécessité d'avoir un instrument adapté
Quantitatif	Quantification directe des images Paramètres de reconstruction uniquement liés à l'hologramme	Problème de la contribution électrostatique Artefacts possibles lors des diverses opérations mathématiques

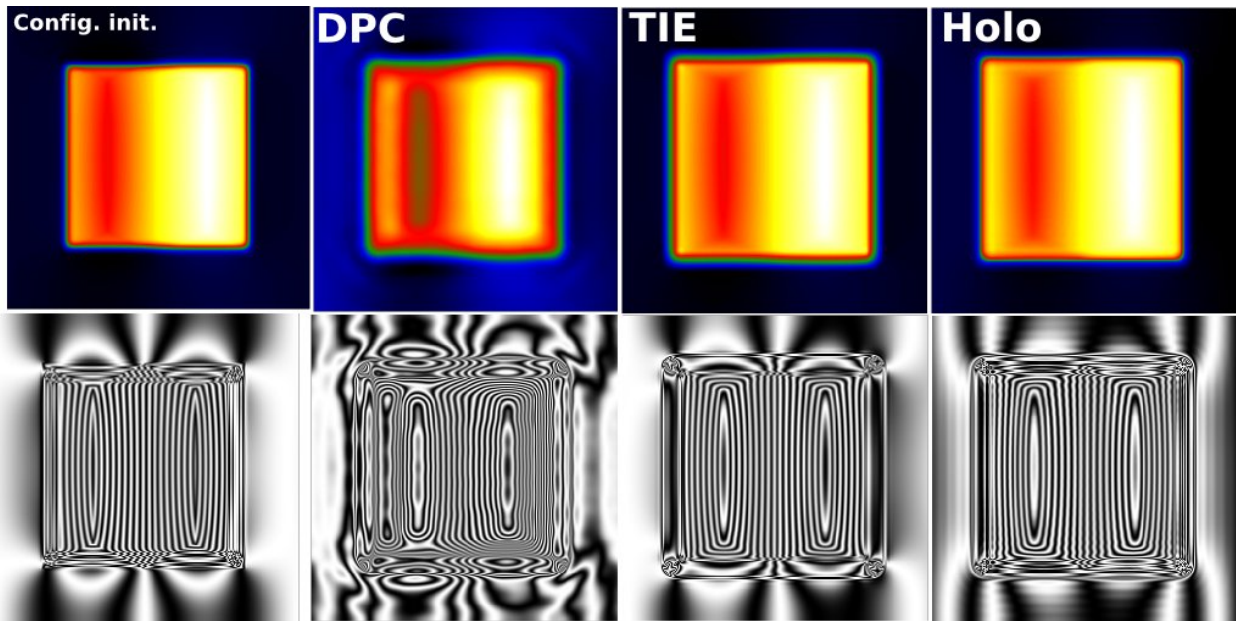
**TAB. II.3:** Récapitulatif des principaux avantages et inconvénients de la méthode de reconstruction par Holographie.



Le tableau II.3 résume les différents avantages et inconvénients de l'holographie.

### Conclusion sur la Cartographie

Nous avons donc désormais au laboratoire accès à trois types d'imageries de la distribution magnétique dans et autour d'un matériau. Ces trois techniques ont chacune leurs avantages, de la forte sensibilité du DPC à la très bonne résolution spatiale de l'holographie, de la facilité d'implémentation de la reconstruction par la TIE à la qualité des échantillons requise, elles sont des techniques parfaitement complémentaires. Voici un récapitulatif des résultats obtenus sur notre système modèle par simulation (Fig. II.20 et tableau II.4).



**FIG. II.20:** Comparaison entre les résultats obtenus par simulation pour les différentes techniques. La première image est la phase magnétique initiale, calculée à partir du déphasage. La première ligne d'images rend compte de la reconstruction de phase (avec un calcul pour récupérer la phase en ce qui concerne le DPC) pour des contributions magnétique et électrique mêlées. La deuxième ligne d'image rend compte de la même information mais cette fois-ci présentée sous une forme en  $\cos(30 \cdot \phi)$

#### Cartographie magnétique dans un MET

- La reconstruction par DPC donne un accès direct aux composantes, non à la phase de l'échantillon. Elle décrit parfaitement la forme des flux magnétiques étudiés.
- Elle est aisément implémentable et est, sous certaines conditions, quantitative.
- L'holographie permet d'obtenir la meilleure résolution et une très forte sensibilité.

Il serait très prétentieux de réduire les avantages et inconvénients de ces trois techniques à quelques lignes, mais je vais essayer dans un dernier tableau (Tab. II.4) de conclure sur cette présentation de l'imagerie magnétique dans un TEM.

	DPC	TIE	Holographie
Résol.	$\sim 20$ nm - Idéal pour observer la structures en domaines	$\sim 5 - 10$ nm - Résolution limitée. Cette technique s'adapte à de nombreux champs de vues	$\sim$ nm - Meilleure résolution. Le champ de vue est par contre limité ( $\sim \mu\text{m}$ )
Sensib.	Quelques dizaines de nm.T - Cette sensibilité peut être augmentée avec le nombre d'images choisi pour l'acquisition. Détection à l'aide des contrastes de Foucault.	Ajustable, jusqu'à quelques nm.T. La sensibilité s'ajuste par contre au détriment de la résolution. Détection à l'aide des contrastes de Fresnel.	Ajustable avec l'interfrange, de l'ordre de 5 nm.T. L'information magnétique est difficile à observer avant traitement des données.
Quantit.	Faisable. Demande encore à être validée	Directe. Elle nécessite néanmoins une connaissance précise de la défocalisation utilisée	Directe. La quantification se fait automatiquement sur les images reconstruites.
Implém.	Tout échantillon - Une référence non magnétique est nécessaire (mais peut être loin de la zone d'observation) pour calibrer la déflexion nulle. Elle nécessite le passage en mode Foucault qui peut être difficile à mettre en oeuvre.	Tout échantillon - Applicable dès que le contraste magnétique est du même ordre de grandeur que le contraste d'amplitude. Applicable dans toute zone pourvu que les variations d'épaisseur ne soient pas trop abruptes.	Besoin d'un équipement adapté (biprisme et FEG). Nécessite une géométrie particulière en bord d'échantillon pour obtenir un faisceau de référence - Très adapté pour les nanostructures en suspension, ou les vues transverses

**TAB. II.4:** Comparaison des trois techniques d'imagerie magnétique dans un TEM sur quatre critères : Résolution, Sensibilité, Quantification et Implémentation

*« Gloire à toi Archimède  
qui fut le premier à montrer que  
quand on plonge un corps dans une baignoire,  
le téléphone sonne. »<sup>1</sup>*



## Chapitre Trois

# Analyse quantitative de Couches Minces Magnétiques

### Sommaire

Introduction . . . . .	66
III.1 Données Préliminaires . . . . .	68
a Caractérisation structurale . . . . .	68
b Caractérisation magnétique . . . . .	70
c Simulation Micromagnétique . . . . .	72
d Conclusion . . . . .	73
III.2 Microscopie de Lorentz sur les alliages FePd . . . . .	73
a Etude en vue plane . . . . .	74
b Etude en vue transverse . . . . .	85
III.3 Études In-situ . . . . .	94
a Cycle d'aimantation perpendiculaire . . . . .	95
b Analyse Quantitative . . . . .	96
c Rôle des Lignes de Bloch Verticales . . . . .	97
Conclusion et Perspectives sur le FePd . . . . .	102

## Introduction

Il existe actuellement deux principaux défis à relever dans le domaine des matériaux magnétiques à propriétés remarquables : augmenter encore et toujours la densité spatiale de l'enregistrement de masse, en diminuant par exemple la taille des objets magnétiques utilisés (les bits de données)<sup>90</sup> et créer un nouveau support pour la logique, où l'information ne serait plus lue sur des écarts de potentiel électrique à chaque coup d'horloge, mais sur la position d'une paroi à chaque rotation du champ magnétique<sup>91</sup>.

Pour le premier de ces défis, l'approche classique employée dans les disques durs est déjà près d'une barrière : la limite super-paramagnétique<sup>92</sup>. La réduction de la taille d'un objet contenant l'information magnétique (sens de l'aimantation) induit une fluctuation thermique de l'aimantation (l'énergie de retournement devient faible devant une infime variation de la température). La donnée ne peut alors se conserver dans le temps. Aussi, depuis plus de 20 ans<sup>93,94</sup> on a cherché à trouver des formes alternatives aux médias d'enregistrement traditionnels.

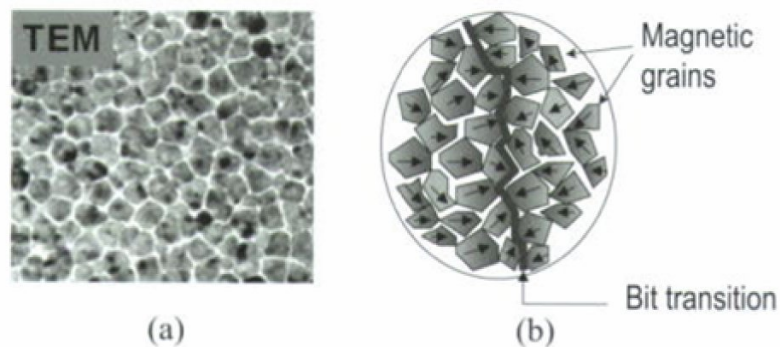


Figure 2. (a) A transmission electron micrograph (TEM) of a typical granular medium. (b) A schematic diagram of a single bit transition in a granular medium.

**FIG. III.1:** Image en microscopie TEM d'une couche active de disque dur. Image tirée de *Perpendicular Magnetic Recording*<sup>95</sup>

D'un côté sont apparues les mémoires dites volatiles, utilisant la technologie de la magnéto-résistance (géante<sup>96</sup>, tunnel<sup>24</sup>). De l'autre, des disques durs comme ceux que nous connaissons, mais avec des géométries et des technologies différentes. Modification des têtes de lecture<sup>97,98</sup>, multiplication de celles-ci, augmentation de la vitesse de rotation<sup>99</sup> ou changement de système de fichier<sup>100</sup>, sont autant d'améliorations qui ont permis d'augmenter la capacité des mémoires de masse magnétiques. Pourtant, elles n'affrontent pas directement le problème de la limite super-paramagnétique, elles le contournent. Pour aller au-delà, ce sont les matériaux contenant les données qu'il faut redéfinir. C'est dès le début des années 80, avant même la commercialisation du premier PC de bureau équipé d'un disque dur, que l'idée de l'enregistrement perpendiculaire est née<sup>101</sup>.

Un disque dur comme nous le connaissons est divisé en bits de données, constitués d'un ensemble de grains cristallins dont l'aimantation pointe dans une même direction (cf Fig. III.1-b). La donnée est contenue dans l'état de ce bit, correspondant au sens de l'aimantation dans le plan du disque. L'idée simple de l'enregistrement perpendiculaire pour réduire l'espace occupé par ces bits sans toucher à leur taille, est de les contraindre verticalement dans la couche (Fig. III.2). Leur intégrité peut être alors préservée tout en les collant les uns aux autres pour réduire l'espace occupé. Les perspectives avec ce type d'enregistrement sont ainsi passées de 25 Gb/in<sup>2</sup> (Gigabits par inch carré) au début du XXI<sup>ème</sup> siècle<sup>102</sup> à plus de 340 Gb/in<sup>2</sup> comme annoncé par Hitachi lors de la sortie de son premier

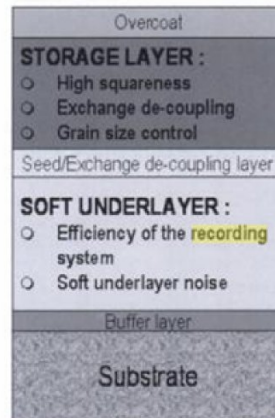
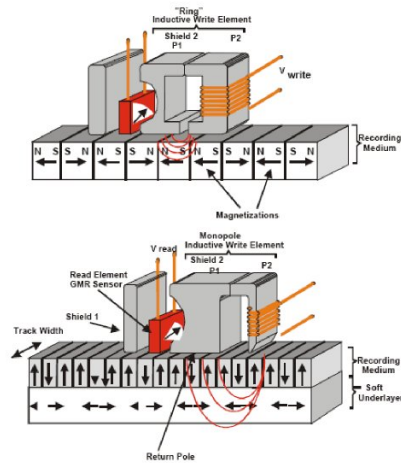


Figure 19. A schematics of a typical perpendicular medium.

**FIG. III.2:** Principe de l'enregistrement magnétique perpendiculaire ([www.hitachigst.com](http://www.hitachigst.com)) et principe structural de l'empilement des couches pour ce type d'enregistrement<sup>95</sup>

disque dur à enregistrement perpendiculaire<sup>103</sup>.

Pour ce type d'enregistrement, de nombreuses recherches<sup>104</sup> sont réalisées sur les matériaux dits "High- $K_u$ " (pour fort coefficient d'anisotropie uniaxiale qui permet notamment de réduire la taille des objets vis-à-vis de la limite super-paramagnétique). Dans ces matériaux, il est possible d'obtenir des films où l'aimantation pointe préférentiellement à la verticale de la couche.

C'est dans ce domaine que notre sujet d'étude se situe. Nous avons plus particulièrement étudié les alliages bi-métalliques à base de fer présentant cette anisotropie uniaxiale, que sont le Fer-Platine<sup>105,106</sup> et le Fer-Palladium<sup>107,108</sup>. Ces deux alliages, étudiés sous leur forme monocristalline depuis très longtemps dans notre laboratoire, ont un avenir prometteur dans les futurs médias d'enregistrement et la magnéto-logique.

L'étude des propriétés structurales et magnétiques de tels alliages a déjà fait l'objet de nombreux travaux<sup>106,108,109,110,111</sup>. Pourtant, leur configuration magnétique n'a jamais pu être imagée à l'échelle des parois de domaine. C'est le but de cette étude par imagerie magnétique dans un TEM. Elle a notamment permis de révéler leur structure magnétique à une échelle nanométrique, tout en permettant de déterminer l'induction de manière quantitative en différents endroits de la couche.

### III.1 Données Préliminaires

L'alliage FePd fait l'objet d'une longue étude au sein du laboratoire de Nanostructures et Magnétisme ces dernières années. La maîtrise de la croissance épitaxiale par MBE (Molecular Beam Epitaxy - Épitaxie à Jet Moléculaire) permet d'obtenir un contrôle à la couche atomique près. Afin de présenter ce système, nous allons donner tout d'abord quelques résultats obtenus pour introduire ces alliages et leur mode de croissance. Les propriétés magnétiques remarquables du FePd sont directement reliées à la structure obtenue en croissance épitaxiale.

#### a Caractérisation structurale

Le Fer Palladium possède une structure cristalline quadratique que nous présentons ici.

##### i Structure Cristalline

L'anisotropie magnétique des alliages FePd apparaît uniquement s'il possède la structure  $L1_0$ . Cette structure particulière présente un ordre chimique des atomes à partir de la configuration  $cf c$  (cubique à faces centrées), quand les deux espèces sont présentes dans des quantités stoechiométriques (Fig. III.3-1). Elle consiste en une succession de plans riches en Fer et de plans riches en Palladium. L'ordre est parfait quand les plan atomiques (002) sont purs en Fe et purs en Pd (Fig. III.3-2). Cet ordre engendre une compression de la maille selon l'axe de l'empilement (noté  $c$  ici). La structure  $L1_0$  peut être obtenue pour des co-dépôts (dépôt simultané de Fer et de Palladium<sup>106,109</sup>) en température ( $T > 350^\circ\text{C}$ ). La maîtrise de l'épitaxie de cette structure par MBE avec l'axe  $c$  parallèle à l'axe de croissance, induit alors une anisotropie magnétique perpendiculaire.

Cet ordre, fortement dépendant de la température de croissance, peut aussi se retrouver dans une moindre mesure par un dépôt alterné couche atomique par couche atomique<sup>109</sup> ou par une irradiation après dépôt<sup>110</sup>.

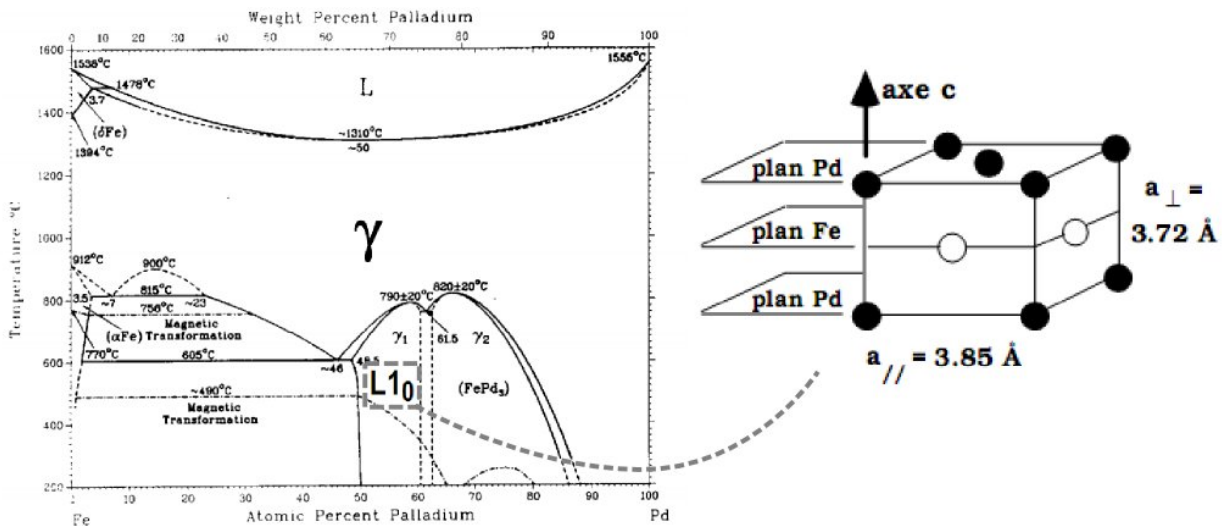
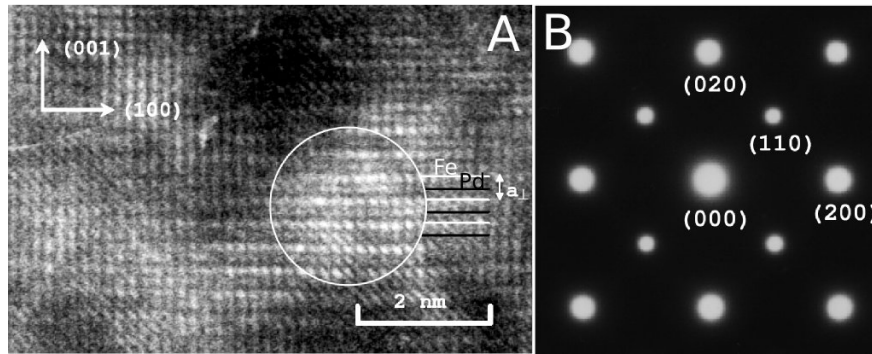


FIG. III.3: Diagramme de phase de l'alliage Fer-Palladium et schéma de la structure  $L1_0$ . Images issues de la thèse de V. Gehanno<sup>109</sup>

##### ii Défauts structuraux

L'étude en microscopie électronique haute résolution fait apparaître l'ordre, à la fois dans l'espace réel et dans l'espace réciproque (Fig. III.4). Les taches de diffraction supplémentaires ((110) sur la



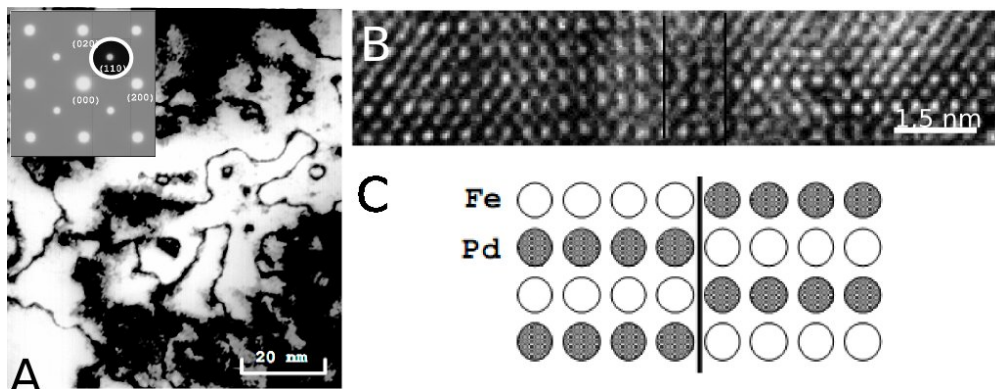
**FIG. III.4:** **A** Cliché en microscopie TEM Haute Résolution de la structure  $L1_0$  dans FePd en vue transverse [010]. **B** Diffraction électronique en vue plane [001] où l'ordre est caractérisé par l'apparition des taches interdites  $\langle 110 \rangle$ . Images issues de la thèse de V. Gehanno<sup>109</sup>

Fig. ??-B) apparaissent du fait de cet ordre chimique. Celles-ci sont normalement interdites dans la structure *cfc* désordonnée.

Deux types de défauts ont été caractérisés dans ces couches<sup>109</sup>. Leur présence est en partie due à la croissance plan par plan non complète des monocouches, à la surface sur laquelle s'effectue la croissance et à la relaxation des contraintes épitaxiales.

**Les parois d'antiphase** délimitent un décalage d'une demi-période de l'alternance des plans atomiques de la structure  $L1_0$ , entre deux domaines cristallins parfaitement ordonnés. Ainsi d'une succession Fe-Pd-Fe-Pd, on peut passer abruptement à une succession Pd-Fe-Pd-Fe (Fig. III.5-C).

Ces défauts interviennent lors de la croissance, lorsqu'une couche n'est pas totalement complétée avant le début de la suivante (ou avec la présence d'une marche atomique sur le substrat). Une manière de les observer est de faire une observation en champ sombre sur les taches d'ordre  $\langle 110 \rangle$  ou  $\langle 001 \rangle$  selon l'orientation). Ainsi les zones où l'ordre de la structure  $L1_0$  a disparu, ce qui est le cas pour une paroi d'antiphase, sont éteintes (Fig. III.5). Il est important de connaître dans nos échantillons la densité et la position de ces parois d'antiphase (APB - AntiPhase Boundaries) car ce sont des défauts structuraux où les parois magnétiques peuvent se piéger.



**FIG. III.5:** **A** Vue en champ sombre sur la tache (110) d'une vue plane de FePd. Les lignes noires sont des parois d'antiphase. L'insert correspond au cliché de diffraction. **B** Cliché en microscopie TEM Haute Résolution d'une paroi d'antiphase dans FePd. **C** Schéma de la structure d'une paroi d'antiphase. Images issues des thèses de V. Gehanno<sup>109</sup> et D. Halley<sup>106</sup>

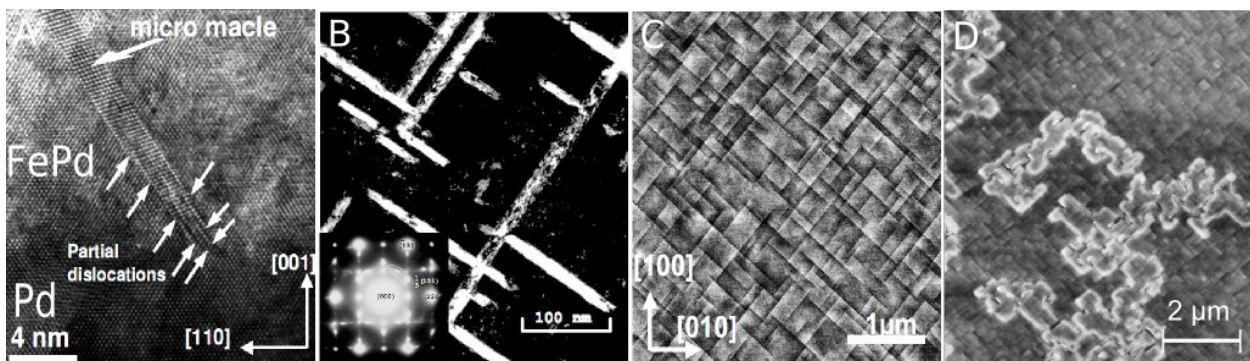


Les micromacles<sup>112</sup> sont des défauts permettant de relaxer les contraintes épitaxiales de la couche sur son substrat : un cristal qui croît sur un autre cristal n'ayant pas le même paramètre de maille est contraint. Ces contraintes sont relaxées par la création de dislocations partielles.

Les macles prennent naissance le long des plans de glissement de ces dislocations. Dans le FePd, elles font apparaître des zones où le réseau cristallin est désorienté par rapport au reste du cristal. Dans ces zones, l'axe  $c$  (et donc l'axe d'anisotropie) n'est plus perpendiculaire à la couche, il correspond à une symétrie miroir de l'axe  $[001]$  par rapport à des plans  $\{111\}$ . Ceci engendre des petits volumes maclés de 5 à 30 plans atomiques de largeur.

Il est possible d'observer ces défauts de plusieurs manières, soit en les imageant directement en Haute Résolution (Fig. III.6-A), soit en effectuant un cliché en champ sombre (Fig. III.6-B), soit en effectuant une étude topographique (Fig. III.6-C). La présence de ces micromacles qui traversent toute la couche d'alliage entraîne l'apparition de marches à la surface. Ces marches se distinguent des marches atomiques de surface par leur hauteur et par leur alignement le long des directions  $\langle 110 \rangle$ .

Ces micromacles sont apparues comme sites de piégeage préférentiel des parois magnétiques, notamment dans le FePt<sup>106</sup> comme le montre la Fig III.6-D ou comme l'ont démontré des simulations magnétiques à l'échelle atomique<sup>8</sup>. Les variations locales de l'ordre dues à ces défauts entraînent des variations de l'anisotropie. L'énergie associée à la paroi est alors modifiée, ce qui a pour effet de piéger celle-ci le long de la micromacle.



**FIG. III.6:** **A** Cliché Haute Résolution d'une micromacle dans FePd. **B** Image en champ sombre des micromacles en vue plane. L'insert correspond au cliché de diffraction associé à l'image. **C** Image par microscopie STM montrant les marches créées à la surface de la couche, par les micromacles. **D** Image MFM où sont couplées deux informations : l'information magnétique (contrastes brillants) se superpose à l'information topographique (contrastes similaires à ceux obtenus en STM en **B**). Images issues de la thèse de D. Halley<sup>106</sup>

### iii Conclusion sur la structure des couches de FePd

Les mécanismes de croissance du Fer-Palladium sont maintenant bien maîtrisés par le laboratoire Nanostructures et Magnétisme. Le piégeage sur les défauts structuraux est une des voies pour expliquer la dynamique de retournement de l'aimantation et de propagation. Dans ce contexte il serait très intéressant d'observer à une échelle adaptée à leurs taille, des parois magnétiques se propager et se piéger sur ces défauts.

## b Caractérisation magnétique

La structure de ces alliages et plus particulièrement l'ordre chimique sont à l'origine de leur configuration magnétique particulière. En effet, cet ordre chimique génère une anisotropie magnétique

perpendiculaire très forte. Avant de présenter une caractérisation précise de leurs propriétés magnétiques par microscopie de Lorentz, nous allons présenter ici quelques résultats obtenus précédemment en magnétométrie et en imagerie MFM.

La littérature propose de nombreuses données concernant les alliages de FePd. Nous avons choisi de présenter ici (cf tableau III.1) quelques uns de ces résultats qui nous ont servis pour les études par microscopie de Lorentz.

	FePd <sub>L10</sub>	FePd <sub>desord.</sub>
Paramètres cristallins	$a_{L10} = 3.86 \text{ \AA}$ $c_{L10} = 3.71 \text{ \AA}$	$a_{cfc} = 3.80 \text{ \AA}$
$\mu_0 M_s$	1.32 ~ 1.39 T	1.32 ~ 1.34 T
$T_c$	455 ~ 470 °C	430 ~ 440 °C
$K_u$	$1 \sim 3 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3}$	$\sim 0 \text{ J.m}^{-3}$

**TAB. III.1:** Tableau récapitulatif des données accessibles pour le Fer-Palladium ordonné et désordonné.  $\mu_0 M_s$  est l'aimantation à saturation du matériau.  $T_c$  est la température de Curie de l'alliage.  $K_u$  est la constante d'anisotropie uniaxiale associée à la structure cristalline. (*données issues de la thèse de V. Gehanno*)<sup>109</sup>

### i Magnétométrie

L'étude complète des cycles d'hystérésis des couches que nous avons étudiées a été réalisée par mesure de l'Effet Hall Extraordinaire (EHE) et par Vibrating Sample Magnetometer (VSM). Le résultat est résumé dans la Fig. III.7.

Le système étudié ici est un système bi-couche, présentant deux anisotropies (une anisotropie perpendiculaire et une anisotropie faible voire nulle). L'empilement est celui utilisé tout au long de cette partie :

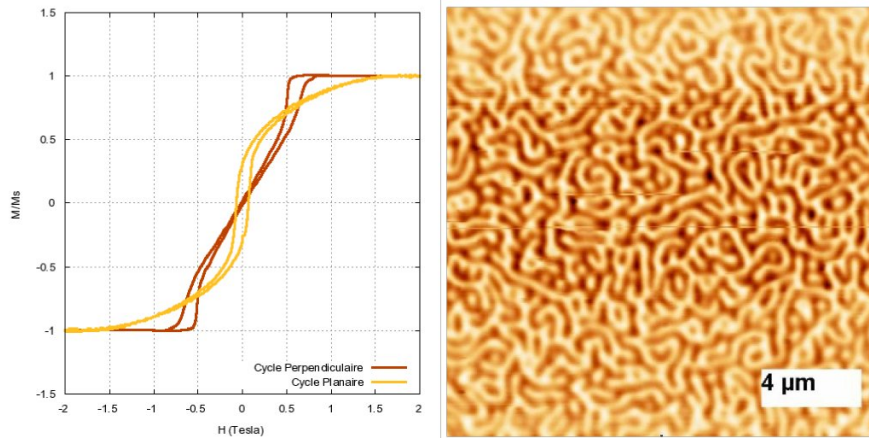
- substrat de MgO (001)
- deux mono-couches de Fer pour favoriser l'épitaxie avec le substrat
- une couche de **FePd**<sub>2</sub>, désordonné, de 16 nm (l'anisotropie magnétique est alors planaire)
- une couche de **FePd** présentant la structure L1<sub>0</sub> de 37 nm (l'anisotropie magnétique est perpendiculaire)
- couche de **Pt** (1,5 nm) est ajoutée sur l'empilement pour empêcher l'oxydation

La première couche magnétique que l'on nommera couche "douce" dans ce chapitre a pour but, dans un disque dur commercial, d'augmenter l'efficacité d'enregistrement (Fig. III.2-B). Dans notre cas, elle nous servira avant tout à aligner les domaines lors d'une aimantation planaire.

Le cycle planaire présente une première composante de facile aimantation (retournement de la couche à faible anisotropie) puis une seconde, de difficile aimantation (retournement de la couche à anisotropie perpendiculaire). Le cycle perpendiculaire montre par contre un axe de facile aimantation, correspondant au retournement de la couche à anisotropie perpendiculaire. La forme du cycle perpendiculaire indique que la saturation est obtenue par processus continu (diminution progressive de la taille des domaines magnétiques) tandis que le retour de la saturation est un phénomène discontinu (état de la saturation préservé avant une apparition soudaine de domaines opposés au champ appliqué).

### ii Études MFM

De nombreuses analyses par MFM ont été réalisées sur les échantillons de FePd, notamment dans des systèmes bicouches ou tricouches<sup>108</sup>.



**FIG. III.7:** **A** Cycles d'hystérésis perpendiculaire (rouge) et planaire (jaune) obtenus par Effet Hall et VSM respectivement sur un échantillon bi-couche de  $FePd_{L1_0} \setminus FePd_2$ . **B** Image MFM obtenue sur le même système en champ nul.

L'image MFM (Fig. III.7-B) du système que nous étudierons en microscopie de Lorentz (système bi-couche) montre une alternance de contrastes blancs et noirs, liés aux champs de fuite sortant (respectivement entrant) de la couche magnétique. On observe ainsi les domaines Up et Down. Cette image montre une distribution de domaines magnétiques entrelacés. On peut estimer la taille caractéristique de ces domaines et ainsi remonter à une largeur de domaines magnétiques de l'ordre de 80 nm. Cette imagerie ne permet pas d'accéder à la structure des parois ou à la distribution de l'aimantation dans les autres couches du matériau (imagerie de surface).

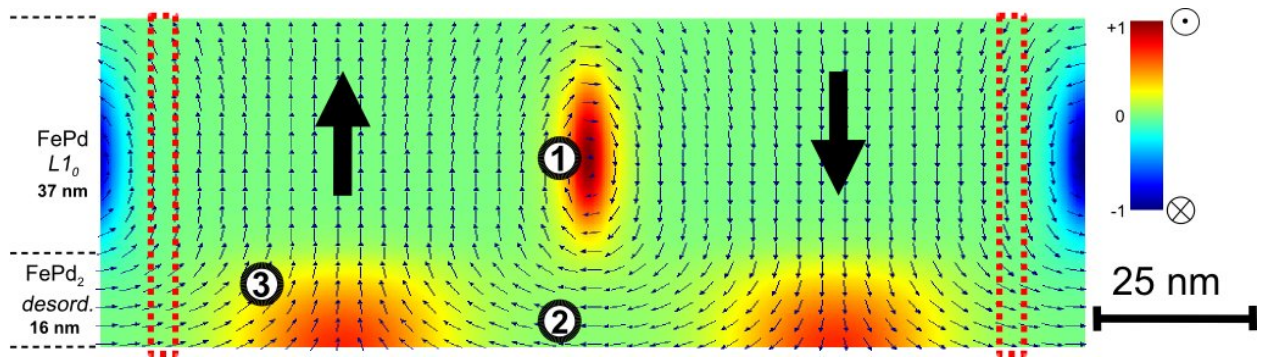
### c Simulation Micromagnétique

Nous avons mis en oeuvre une simulation micromagnétique pour ce système, en considérant donc ses deux couches magnétiques du système : 37 nm de  $FePd_{L1_0}$ , superposée sur une couche de 16 nm de  $FePd_2$  sans anisotropie. La simulation micromagnétique permet par exemple de se renseigner sur la configuration magnétique de cette couche où l'anisotropie est presque nulle. L'effet de forme du film mince devrait avoir tendance à ramener l'aimantation dans le plan de la couche du fait du champ démagnétisant.

Les paramètres utilisés pour ce calcul sont issus des mesures MFM (la taille caractéristique mesurée nous donne une période de 160 nm), des mesures par Effet Kerr (Coefficient d'anisotropie uniaxiale de  $3 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3}$ ) et des mesures SQUID (Aimantation à saturation de 1,29 Tesla). Le maillage est déterminé de façon à garder une résolution suffisante et un temps de calcul relativement court (de l'ordre de quelques heures). Le calcul est effectué en deux dimensions, considérant le système invariant dans la troisième direction (cf. Chap I).

Le résultat de la simulation est présenté en Fig. III.8. Nous pouvons faire plusieurs remarques :

- la structure en domaine Up/Down demeure sur la totalité de la couche  $L1_0$ ,
- les domaines sont séparés par des parois de Bloch (①), elles-mêmes entourées par des domaines de fermeture de Néel (②),
- la couche douce a pour principal effet de permettre au flux magnétique de boucler à l'intérieur de celle-ci, diminuant les champs de fuites dans le substrat,
- la remarque précédente induit un élargissement du domaine de fermeture de Néel dans sa partie inférieure, à l'intérieur de la couche douce,
- une composante d'aimantation planaire apparaît sous les domaines (③). Elle est parallèle aux parois de Bloch et ferme le flux magnétique dans la couche douce.



**FIG. III.8:** Simulation micromagnétique réalisée avec GL-FFT d'un système bi-couche  $FePd_{L1_0} \setminus FePd_2$ . Les 2 composantes dans le plan de la feuille sont symbolisées par des vecteurs, la troisième composante (perpendiculaire au plan de la feuille) est représentée par le code couleur décrit sur l'échelle de droite. Les marques (①, ② et ③) indiquent les zones d'aimantation planaire décrites dans le texte. Les zones en pointillés rouges indiquent les zones où n'est attendue aucune déflexion magnétique pour la vue plane (explications plus loin dans le chapitre).

A partir de ces résultats micromagnétiques nous avons simulé, comme nous le verrons plus loin, les contrastes attendus en microscopie de Lorentz. On observe aussi que la taille des parois magnétiques (de l'ordre de  $8 \sim 9$  nm) est du même ordre que ce que donne le calcul à partir des caractéristiques du matériau (calcul effectué pour le matériau massif, qui ne prend pas en compte la contrainte de l'épaisseur :  $\delta_w = \pi \sqrt{\frac{A}{K_u}} = 7,6$  nm).

#### d Conclusion

Ces résultats renseignent sur le comportement magnétique des films de FePd. Si les simulations micromagnétiques nous prédisent des configurations précises à l'échelle nanométrique, aucune mesure expérimentale n'a permis jusqu'à présent de les confirmer (ou les infirmer).

De plus le comportement de cette configuration magnétique lors des processus d'aimantation demeure une inconnue. Les phénomènes de piégeage, la dynamique des parois ou encore la présence de défauts magnétiques (points ou lignes de Bloch) nécessitent des études supplémentaires sur ces alliages.

Ce chapitre traite donc des premières études par microscopie de Lorentz et holographie électronique sur ce système. Elles nous ont notamment permis de valider expérimentalement la configuration magnétique de ces systèmes, ainsi que d'étudier les mécanismes de retournement de ces couches.

## III.2 Microscopie de Lorentz sur les alliages FePd

L'étude de ces couches a été réalisée en combinant les techniques d'imagerie présentées au chapitre II. Elles sont complémentaires et chacune d'elles a permis de mettre en évidence certaines propriétés de l'alliage FePd. Nous présentons les résultats selon la géométrie d'observation (vue plane ou vue en coupe), et selon la technique d'obtention du contraste (Fresnel, DPC, TIE et Holographie). Le plan de cette partie va donc se dessiner comme suit : une étude en vue plane, où le trajet des électrons est parallèle à l'aimantation des domaines (l'aimantation dans les domaines n'influe alors pas sur leur trajectoire) et une étude en coupe, quand le trajet des électrons est perpendiculaire à celle-ci. L'action magnétique des domaines sur le faisceau d'électrons est donc différente dans les deux cas. Pour finir nous présenterons les premiers résultats d'aimantation in-situ.

Toutes ces études ont été menées sur différents microscopes électroniques que j'ai eu l'occasion d'utiliser. Le tableau Fig. III.2 présente leur principales caractéristiques.

Microscope	Résolution (estimée)	Filtrage en énergie	Images présentées
JEOL 3010 - 300kV	< 10 nm (MiniLens)	oui	- DPC (mode TEM) - Aimantation In-situ
Titan - 300kV	1.5 nm (Lorentz Lens)	oui	- Fresnel, TIE - Holographie
Tecnaï - 200kV (CEMES-Toulouse)	5 nm (1 <sup>ere</sup> lentille Corr. Cs)	oui	- Holographie
CM20 - 200kV (Glasgow)	< 10 nm (Lorentz Lens)	non	- DPC (mode STEM)

**TAB. III.2:** Présentation des différents microscopes utilisés. La résolution ponctuelle est celle estimée de la lentille utilisée comme objectif (entre parenthèses est inscrit le type de lentille). Le filtrage en énergie permet d'augmenter le contraste en diminuant le bruit dû aux électrons inélastiques. La dernière colonne présente le type d'analyse effectuée avec le microscope.

Une dernière remarque : nous avons vu au chapitre II que l'information obtenue en microscopie de Lorentz résulte de la somme de toutes les composantes perpendiculaires de l'induction rencontrées par les électrons au cours de leur trajectoire. Nous devons donc définir une nouvelle grandeur : l'induction magnétique intégrée le long du trajet des électrons. Nous noterons cette grandeur vectorielle  $\bar{b}(\vec{r})$ , définie comme :

$$\bar{b}(\vec{r}) = \begin{pmatrix} \bar{b}_x \\ \bar{b}_y \end{pmatrix} = \int_{-\infty}^{\infty} \begin{pmatrix} B_x(x, y, z) \\ B_y(x, y, z) \end{pmatrix} dz$$

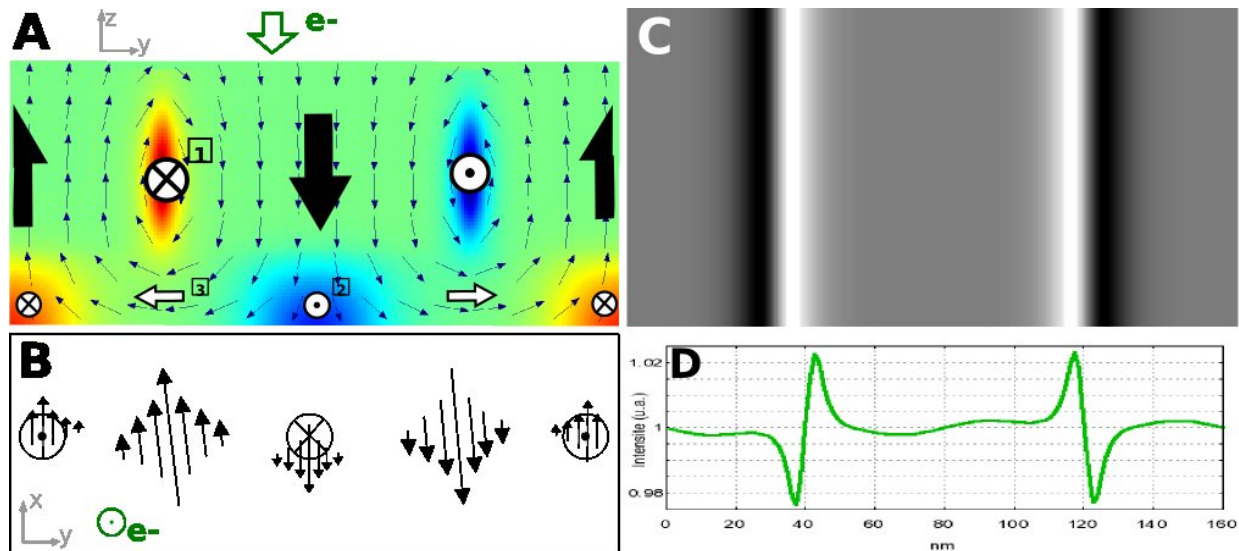
### a Etude en vue plane

Quelques études dans la littérature ont déjà été réalisées en microscopie de Lorentz sur des alliages à anisotropie perpendiculaire à base de Fer : les études de Kohler<sup>113</sup>, de Aitchison<sup>114</sup> (cette dernière sur des échantillons issus du même bâti d'épitaxie que nos échantillons), ou de Hino<sup>115</sup>. Elles ont toutes montré la nécessité d'incliner l'échantillon pour donner aux domaines une composante magnétique orthogonale au faisceau (la seule visible pour la microscopie de Lorentz).

Cette inclinaison permet de révéler l'aimantation perpendiculaire à la couche, l'aimantation dans les domaines pouvant ainsi agir sur le trajet électronique. Dans ces diverses études, si l'inclinaison de l'échantillon a permis d'obtenir des contrastes, il est néanmoins difficile d'interpréter quantitativement l'information sondée, du fait de la faiblesse du signal<sup>116</sup>.

Ces alliages à aimantation perpendiculaire sont des matériaux originaux pour l'étude par microscopie de Lorentz en vue plane. En effet, dans cette géométrie, la majorité de leur aimantation (qui correspond aux domaines magnétiques) se trouve parallèle au faisceau électronique et donc ne l'affecte pas. Mais comme l'a montré la simulation micromagnétique (Fig. III.9-A), on observe qu'il existe néanmoins plusieurs composantes magnétiques perpendiculaires au trajet des électrons. On dénombre trois contributions différentes :

- ① une composante dans les parois de Bloch entre les domaines,
- ② une composante à l'aplomb de la paroi, correspondant à la dissymétrie entre le domaine de fermeture de Néel situé dans la couche douce (plus étendu) et celui situé dans la couche anisotrope (il y aurait sinon une parfaite compensation),
- ③ une composante sous les domaines, dans la couche douce.



**FIG. III.9:** **A.** Simulation Micromagnétique de l'empilement de notre échantillon. La description de cette représentation est donnée en Fig. III.8. **B.** Distribution magnétique en vue plane de la simulation présentée en A. **C.** Contrastes de Fresnel simulés (défocalisation  $10 \mu m$ ) correspondant à la distribution montrée en B. **D.** Profil d'intensité de C.

### i Etude des contrastes de Fresnel

#### Simulation des Contrastes :

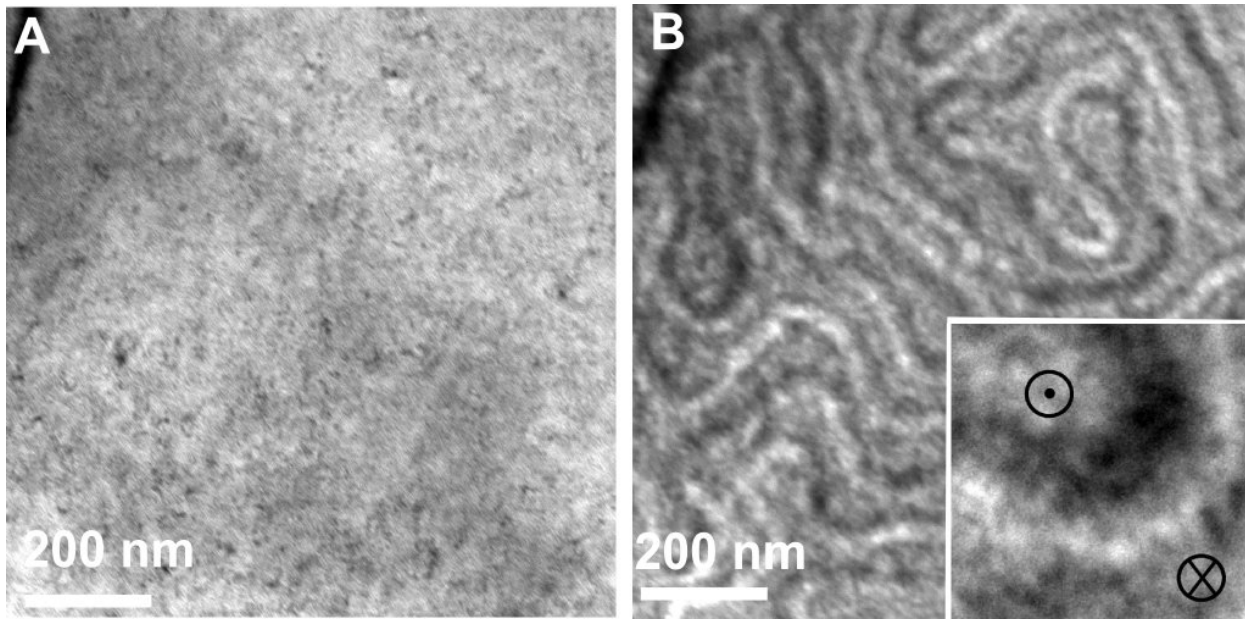
En se basant sur l'approche de Aharonov-Bohm (cf. Eq. II.7), l'intégration de l'induction magnétique le long du trajet des électrons donne le champ vectoriel à deux dimensions que traverse l'onde électronique (comme présenté Fig. III.9-B). A partir de ce champ de vecteurs nous pouvons simuler les contrastes de Fresnel que doit produire cette couche (cf. Chap. II).

Des trois contributions que "voient" les électrons, deux seulement sont visibles dans les contrastes de Fresnel :

La première est associée aux parois de Bloch (⊙ sur la Fig. III.9-A). Le contraste est représentatif d'un saut de phase correspondant dans notre cas à une variation continue de l'aimantation passant par un maximum. Il est caractérisé par un couple de lignes noires et blanches dans la figure d'intensité (Fig. III.9-C). L'ordre blanc-noir ou noir-blanc dépend du sens de l'aimantation dans la paroi de Bloch (notons qu'il s'inverse aussi pour une défocalisation opposée). Dans le chapitre précédent, les contrastes de Fresnel étaient présentés comme des contrastes de parois pour l'aimantation planaire. Ils étaient alors formés par l'interférence des électrons issus des domaines. Nous avons ici aussi un contraste de Fresnel de paroi magnétique, mais il est produit par les électrons ayant traversé la paroi, interférant avec ceux ayant traversé les domaines.

Le deuxième type de contraste est issu de l'aimantation planaire située sous les domaines magnétiques (⊙). Ces contrastes sont beaucoup moins intenses que ceux obtenus au niveau des parois, mais ils leur sont similaires (même variation de l'aimantation). Ils sont beaucoup plus diffus au sein de l'image et seront difficiles à observer dans les clichés expérimentaux du fait du fort contraste des parois.

La troisième contribution d'aimantation planaire est la partie inférieure des domaines de fermeture de Néel (⊙). Les contrastes issus de cette composante ne sont pas visibles sur la simulation. En effet, la déflexion des électrons dans ce cas se fait tangentielle à la paroi. Aussi, à moins d'une variation brusque de la direction de la paroi de Bloch, il sera difficile de l'observer dans les contrastes de Fresnel. Les zones de recouvrement ou de déplétion d'électrons apparaissent uniquement au niveau



**FIG. III.10:** **A** Image focalisée en vue plane de la couche  $FePd_{L_{10}} \setminus FePd_2$ . **B** Image sur-focalisée en vue plane de la même zone qu'en A (Défocalisation  $\Delta f = 10 \mu m$ ). Les contrastes de Fresnel apparaissent. L'insert est un zoom de la zone, présentant la forme des contrastes. *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

des variations d'orientation de la paroi, et sont de plus mêlés au fort contraste produit par celle-ci.

#### Note sur la méthode de simulation

La simulation de clichés en microscopie électronique utilise normalement une approche différente de celle employée ici : le multislice. Nous nous sommes intéressés à la nécessité de développer une telle méthode pour nos simulations.

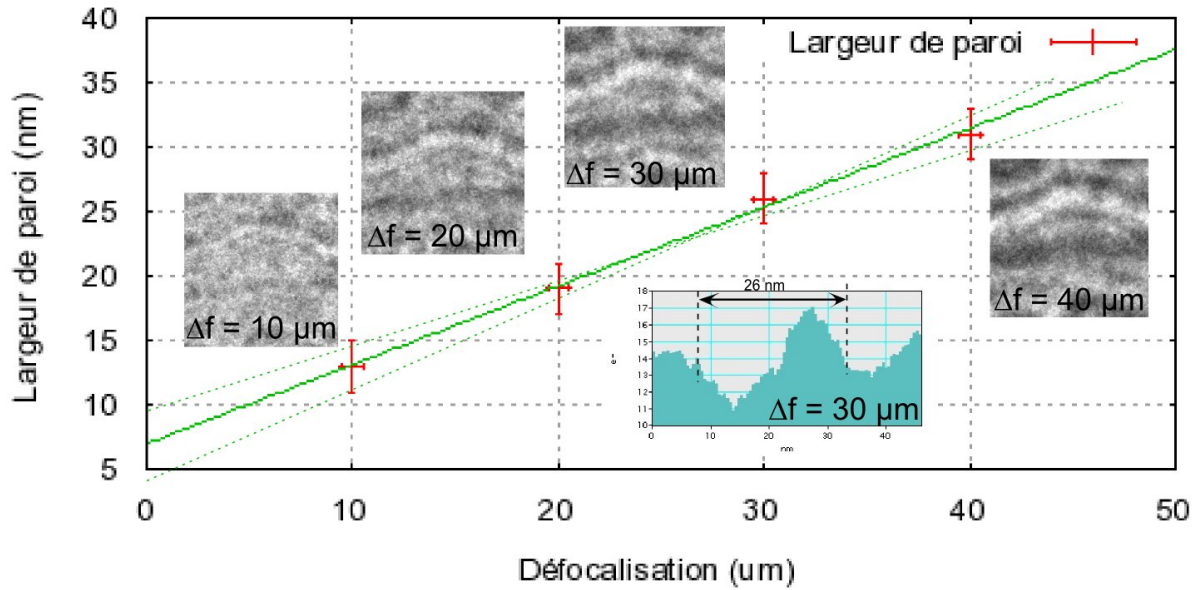
En première approximation, le fait de réduire l'objet de phase magnétique à un simple plan peut se justifier. En effet, la déflexion magnétique engendrée par 100 nm de matière où règne une induction magnétique de 1 Tesla est de 0.06 mrad. Si on fait l'hypothèse que cette déflexion se produit au niveau de la surface d'entrée de l'échantillon, l'onde en ressortant de l'échantillon, 100 nm plus loin, ne se sera décalée que de 0,1 nm (alors que pour un angle typique de Bragg de quelques mrad, ce décalage est de l'ordre de 10 nm).

Cette déviation du faisceau est négligeable, que ce soit par rapport aux dimensions de nos objets ou par rapport à la résolution de notre lentille. Aussi, une approche en multislice ne semble pas nécessaire. Néanmoins, une étude plus approfondie est disponible en Annexe H.

#### Clichés expérimentaux

Les premiers clichés en contrastes de Fresnel sont présentés en Fig. III.10. On y retrouve la distribution entrelacée observée en MFM. Mais ici le contraste provient des parois et non des domaines. Le profil de contraste est le même que celui prédit par nos simulations (cf. insert). Les contrastes issus des zones d'aimantation planaire sous les domaines ne peuvent être observés car ceux-ci sont dissimulés sous les contrastes dus à l'amplitude de l'échantillon (variations dans l'image focalisée Fig. III.10-A).

Nous avons donc une image de la configuration magnétique de l'alliage avec une résolution à l'échelle des parois magnétiques.



**FIG. III.11:** Méthode d'interpolation à "zéro défocalisation" de la largeur de paroi à partir des contrastes de Fresnel. Les images sont données pour différentes valeurs de la défocalisation. Le profil présenté donne l'analyse de la largeur de paroi pour une défocalisation de 15 µm. Images obtenues avec le microscope FEI Titan

### Largeur de paroi

Il est difficile de pouvoir quantifier les largeurs des parois que l'on observe uniquement à partir d'un contraste de Fresnel. Une méthode habituellement proposée pour la déterminer est de réaliser l'interpolation du *zéro défocalisation*<sup>117</sup> : on détermine la largeur du contraste pour différentes valeurs de la défocalisation ( $\Delta f$ ) et on effectue la régression linéaire pour obtenir la valeur à défocalisation nulle.

Cette extrapolation (Fig. III.11) nous donne une longueur de paroi de  $(7 \pm 3)$  nm. La valeur calculée à partir des paramètres du FePd massif, était de 7,6 nm et celle évaluée sur les simulations micromagnétiques d'environ 8 nm. Nous avons donc un très bon accord entre le calcul et l'expérience.

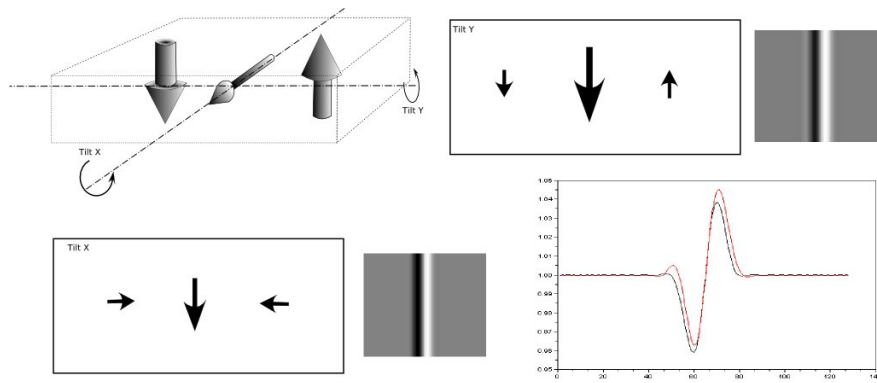
### Influence du tilt

Nous avons présenté en introduction à ces résultats, les expériences précédentes utilisant l'inclinaison de l'échantillon pour révéler l'information magnétique. Nous avons donc étudié la dépendance en tilt des contrastes obtenus pour notre système bicouche.

Une évaluation simple (Fig. III.12) montre que l'aspect général des contrastes ne change pas avec l'inclinaison. Celle-ci peut se diviser en une combinaison linéaire de deux axes de rotation : l'un parallèle et l'autre perpendiculaire à la direction de la paroi.

Le premier (Tilt Y) ajoute un contraste de Fresnel classique (blanc ou noir) d'une configuration d'aimantation planaire à celui existant. Le deuxième (Tilt X) n'introduit qu'une déflexion des électrons tangentielle à la paroi. À la manière des électrons portant l'information magnétique issue de la partie basse du domaine de fermeture de Néel, leur effet ne va être visible que dans le cas d'une variation brusque de l'orientation de la paroi. Les simulations effectuées sur ces deux inclinaisons (Fig. III.12) montrent qu'à part une faible augmentation ou diminution du contraste, l'information varie très peu.





**FIG. III.12:** Schématisation de l'effet du tilt sur nos contrastes de Fresnel. La projection dans le plan de la lentille objective est donnée pour deux inclinaisons (Tilt X et Tilt Y). Le contraste de Fresnel correspondant a été simulé ( $\Delta f = 10 \mu\text{m}$  et Tilt =  $20^\circ$ ). Le profil en bas à droite présente les deux profils d'intensité (rouge pour le tilt Y, noir pour le tilt X). Le profil pour un Tilt nul est identique à celui obtenu pour le Tilt X.

Ceci permet donc de conclure que l'inclinaison de la lame par rapport au faisceau d'électrons a peu d'influence sur le contraste de Fresnel et n'est donc pas expérimentalement nécessaire.

**Conclusion sur les contrastes de Fresnel** Les informations contenues dans les contrastes de Fresnel permettent d'avoir un aperçu direct de la configuration magnétique de ces couches. Ils fournissent en outre, et contrairement aux autres techniques présentées au premier chapitre, une information sur les parois magnétiques : connaissance de leur largeur et du sens relatif de l'aimantation au sein des parois.

Afin d'approfondir notre étude, nous avons réalisé des cartographies magnétiques à l'aide du DPC et de la TIE. Nous pouvons noter ici la limite de l'holographie que nous n'avons pas pu appliquer sur cet échantillon. L'absence de faisceau de référence (de trou proche des zones d'observation) ne permet pas son utilisation.

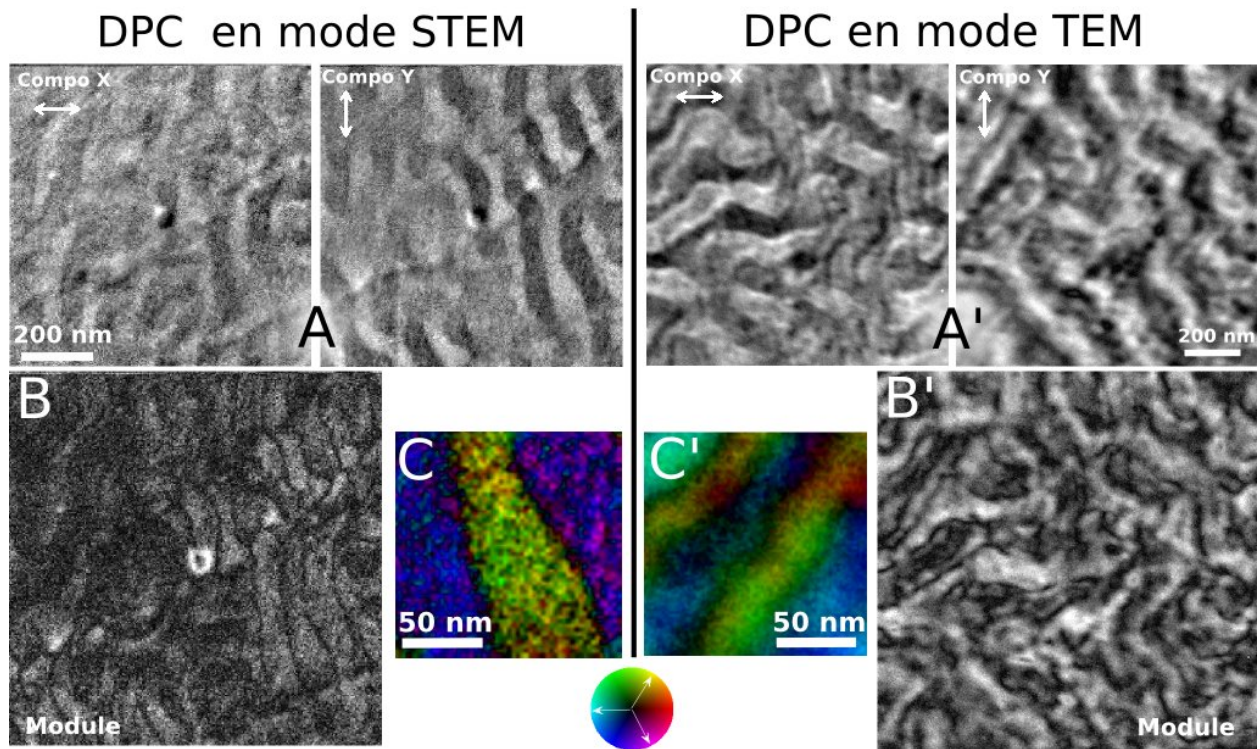
## ii Etude par DPC

Je vais axer cette section sur une comparaison des deux versions du Differential Phase Contrast : en mode TEM et en mode STEM. Les études TEM ont été effectuées sur le microscope JEOL 3010 du laboratoire. En complément, j'ai aussi pu réaliser des observations en mode STEM au laboratoire de microscopie de M. John Chapman, de l'université de Glasgow. Ces études ont été réalisées avec le Dr McVitie. Je m'attacherai donc à comparer ces deux approches, en faisceau fixe parallèle d'une part, et en mode balayage nanosonde d'autre part.

La Fig. III.13 présente une série d'images obtenues en mode STEM et une autre en mode TEM. La tache centrale présente sur les images en mode STEM est uniquement due au détecteur et n'a pas de raison physique.

**Description des cartographies obtenues** Ces cartographies en DPC peuvent donner un doute quant à la configuration magnétique que présente réellement notre échantillon. A première vue, la distribution magnétique semble majoritairement planaire, alternant des domaines magnétiques de sens opposé.

En fait, l'intensité observée est due principalement aux parois de Bloch. Cette intensité est mêlée à celle correspondant aux zones d'aimantation planaire situées sous les domaines (③ sur la Fig. III.8). Ces deux contributions sont parfois séparées par des bandes noires (Fig. III.13-B') qui révèlent des zones où l'induction est :



**FIG. III.13:** Comparaison d’une acquisition DPC en mode STEM (à gauche) et TEM (à droite) pour l’échantillon  $FePd_{L1_0} \setminus FePd_2$ . **A et A’.** Composantes de l’induction obtenues à partir de l’acquisition DPC en STEM et TEM respectivement. **B et B’.** Module de l’aimantation calculé à partir des composantes. **C et C’.** Cartographie couleur de l’induction magnétique, sur une partie de la zone d’observation en A et B. Le nombre d’images utilisées pour l’acquisition en mode TEM est de 20 par demi-composante; le diaphragme utilisé est le plus petit disponible dans le JEOL 3010, sa taille est de  $0.5 \mu m$ . Le code couleur est celui qui sera utilisé tout au long de ce manuscrit pour les cartographies de l’induction magnétique : **La teinte de la couleur** décrit la direction et le sens de l’induction magnétique et **L’intensité de la couleur** correspond à son module. *Images obtenues avec le microscope FEI CM20 pour la partie STEM et sur le JEOL 3010 pour la partie TEM*

- Soit purement perpendiculaire au film (parallèle au trajet des électrons)
- Soit présentant des composantes planaires, opposées l’une à l’autre, qui se compensent le long du trajet des électrons

Ces bandes noires sont décrites sur la simulation micro-magnétique (Fig. III.8) par les zones en pointillés. Ce sont les seuls endroits où les diverses contributions d’aimantation planaire dans la couche se compensent parfaitement et ne présentent donc, pour la microscopie de Lorentz, aucune induction magnétique. Elles n’apparaissent que lorsque la paroi de Bloch est de sens opposé à la zone d’aimantation située sous le domaine adjacent à la paroi.

Sur la cartographie DPC-TEM, on distingue des “fils” d’induction intense (Fig. III.13-C’), séparant des zones plus sombres. Ces “fils” sont les parois magnétiques qui séparent les domaines. Les domaines sont représentés ici par les zones d’aimantation planaire situées dans la couche douce.

Les larges bandes d’induction planaire homogènes observées dans la cartographie STEM sont en fait une superposition des contributions ① et ③ (Fig. III.8). La comparaison entre les deux cartographies couleur (Fig. III.13-C et C’) montre bien ce phénomène. Alors que dans la cartographie obtenue en TEM, apparaît une réelle différence entre les deux contributions, celle-ci est totalement écrasée dans la cartographie du mode STEM par manque de sensibilité.

Nous n’avons pas encore pu effectuer de tests pour valider la quantification des images en DPC-

TEM. Les deux cartographies présentées sont donc uniquement qualitatives.

**Comparaison des 2 techniques** Il est difficile de conclure définitivement sur l'induction magnétique dans les films. Les parties d'images sur lesquelles se basent les observations sont très localisées et le signal pourrait être interprété autrement. Les descriptions proposées sont avant tout prospectives et la distinction entre les différentes composantes varie d'une zone à l'autre de l'échantillon. C'est pourquoi nous allons étoffer ces observations par une analyse des cartographies obtenues par la résolution de la TIE dans la section suivante. Par contre, nous avons ici une occasion unique de pouvoir comparer la cartographie obtenue en utilisant deux modes du Differential Phase Contrast. Une différence fondamentale entre ces deux techniques vient de la lentille utilisée pour l'imagerie. La lentille MiniLens du JEOL 3010 semble permettre une meilleure résolution que la lentille du CM 20, pourtant dédiée à l'imagerie magnétique. Les images sont acquises en mode filtré sur le JEOL 3010, ce qui augmente significativement le rapport signal sur bruit dans l'image<sup>118</sup> et améliore ainsi la sensibilité de la mesure. La cartographie en mode STEM semble avoir moins de sensibilité magnétique.

D'un point de vue général, il faut noter l'extrême lourdeur d'une acquisition en DPC-TEM. La nécessité d'acquérir de nombreuses images rend cette technique très longue (de 5 à 10 minutes). Cette durée expose l'expérimentateur à de nombreux artefacts lors de l'acquisition : dérive de l'échantillon, et dans notre cas, de la fente de filtrage en énergie, ou bien d'une mauvaise calibration de la compensation. De plus cette acquisition nécessite le pilotage du microscope en mode FreeLens (hors des conditions normales d'utilisation). Ce sont autant de facteurs qui peuvent rendre une acquisition inexploitable. Au contraire, l'acquisition en mode DPC-STEM, une fois le microscope aligné, ne requiert que le temps d'un balayage, soit de l'ordre de quelques dizaines de secondes. Pour conclure, si le DPC-TEM présente le grand avantage de pouvoir adapter sa sensibilité (par la définition du nombre d'images par acquisition) et donc, dans notre cas, de révéler une structure magnétique non détectée en DPC-STEM, il faut garder à l'esprit qu'elle peut être difficile à mettre en oeuvre. Par la suite, si la technique TEM se révèle être réellement quantitative son avantage sur la technique STEM deviendra significatif.

#### DPC - Résumé

- Nous avons mis en évidence une structure magnétique avec les techniques DPC, qui semble en accord avec les simulations.
- La résolution spatiale offerte par notre technique de DPC en mode TEM permet de distinguer les parois magnétiques. Nous pouvons donc l'évaluer à une **vingtaine de nanomètres**.
- Cette résolution pourrait être améliorée de façon significative avec l'utilisation d'une lentille plus performante (comme celle disponible sur le Titan).
- Nous avons également pu comparer les deux techniques décrites pour le mode DPC, par l'analyse de deux cartographies magnétiques obtenues sur le même échantillon. Cette comparaison semble mettre en avant la technique de DPC en mode TEM.
- Si l'acquisition en DPC-TEM peut être complexe à mettre en oeuvre, l'acquisition de clichés en DPC-STEM nécessite en revanche un microscope STEM équipé d'un détecteur dédié à ce type d'imagerie.

Cette technique fut la première implémentée pour la cartographie magnétique au laboratoire, avant même l'arrivée du TITAN et de sa lentille de Lorentz dédiée. Elle nous a permis de confirmer la distribution magnétique de ces films minces, mais il est apparu très vite qu'une technique plus résolue était nécessaire : c'est l'objet de la section suivante avec la résolution de l'équation de transport d'intensité (TIE).

### iii Etude par reconstruction via la TIE

Les contrastes de Fresnel obtenus laissent déjà apparaître une très bonne sensibilité magnétique. Les cartographies DPC nous ont donné par ailleurs une bonne idée du signal magnétique qu'il est possible de résoudre en microscopie de Lorentz. Nous allons voir que la technique la mieux adaptée pour ce type de géométrie est la reconstruction de phase par résolution de la TIE.

Comme présenté au chapitre précédent, la reconstruction focale permet de déterminer le déphasage de l'onde électronique. Cette information de phase est porteuse à la fois d'une donnée magnétique et d'une donnée relative à l'épaisseur de la couche et à sa chimie (le potentiel interne). Nous avons abordé au chapitre précédent la nécessité de s'affranchir de la composante électrostatique pour obtenir une information purement magnétique et donc quantitative. Nous proposons ici une méthode originale qui permet de soustraire la contribution électrostatique.

**Soustraction de l'information électrostatique** En reprenant l'expression de la phase dans l'équation de Aharonov et Bohm (Eq. II.7) nous pouvons déterminer les composantes de l'induction magnétique à partir de l'information de phase totale. A partir de la définition du potentiel vecteur  $\vec{B} = \text{rot}\vec{A}$  nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned}\partial_y A_z &= B_x + \partial_z A_y \\ \partial_x A_z &= -B_y + \partial_z A_x.\end{aligned}\tag{III.1}$$

En intégrant sur la totalité du chemin des électrons (l'axe  $z$ ), on obtient :

$$\begin{aligned}\int_{-\infty}^{\infty} \partial_y A_z(x, y, z) dz &= \bar{b}_x(x, y) + [A_x(x, y, z)]_{z=-\infty}^{z=\infty} \\ \int_{-\infty}^{\infty} \partial_x A_z(x, y, z) dz &= -\bar{b}_y(x, y) + [A_y(x, y, z)]_{z=-\infty}^{z=\infty}\end{aligned}\tag{III.2}$$

où les deuxièmes termes s'annulent si l'on considère que le potentiel vecteur est équivalent de part et d'autre, loin de l'échantillon. D'autre part en considérant le gradient de la phase (Eq. II.7), on obtient :

$$\begin{aligned}\frac{e}{\hbar} \bar{b}_y &= -\partial_x \phi + C_E \partial_x [\bar{V}_0 t(x, y)] \\ -\frac{e}{\hbar} \bar{b}_x &= -\partial_y \phi + C_E \partial_y [\bar{V}_0 t(x, y)]\end{aligned}\tag{III.3}$$

où  $\bar{V}_0$  est le potentiel interne moyen du matériau traversé (ce potentiel est a priori homogène en tout point de la zone imagée dans le cas d'une vue plane),  $t(x, y)$  représente l'épaisseur de l'échantillon. On peut réduire ce système à une expression vectorielle :

$$\frac{e}{\hbar} \vec{k} \times \vec{b}(x, y) = +\vec{\nabla} \cdot \phi(x, y) - C_E \vec{\nabla} \cdot [\bar{V}_0 t(x, y)]\tag{III.4}$$

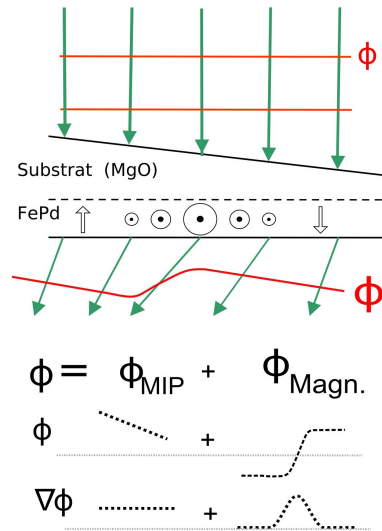
où  $\vec{k}$  est ici un vecteur unitaire de l'axe optique.

On a donc deux configurations particulières de l'échantillon pour lesquelles cette équation peut être réduite :

1. Si  $\Delta t(x, y) = \text{cste}$ , le terme relatif au potentiel interne s'annule.
2. Si le gradient d'épaisseur est uniforme :  $t(x, y) = \alpha x + \beta y + \delta$ , alors ce terme se réduit à une constante vectorielle :  $C_E \bar{V}_0 \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix}$ .

Les lames minces que nous utilisons pour l'observation TEM en vue plane sont préparées par la méthode classique : polissage mécanique en face arrière, puis attaque ionique à faible angle de l'ordre de 5 à 6° sur un PIPS (Precision Ion Polishing System de Gatan<sup>©</sup>). Le profil de l'échantillon obtenu est relativement homogène, présentant une variation continue de l'épaisseur, dépendante de l'angle utilisé pour l'attaque aux ions. Nous ferons donc l'hypothèse que le déphasage dû au potentiel interne est une rampe de pente constante. Le gradient de la phase reconstruite par la résolution de la TIE donne ainsi une information magnétique à laquelle est additionnée un vecteur constant. Pour s'affranchir de cette contribution électrostatique, il suffit de retirer une constante vectorielle à la distribution des vecteurs issus de la dérivée de la phase. Une description schématique, expliquant le déphasage de l'onde électronique est présentée en Fig. III.14.

**FIG. III.14:** Principe de la formation du déphasage pour nos échantillons en vue plane. Celui-ci est composé d'une contribution magnétique et d'une contribution due à l'épaisseur de l'échantillon. Cette dernière se réduit à une constante lorsqu'on prend la dérivée de la phase.



Nous avons, avec Christophe Gatel\*, réalisé une routine (MAP - Map Analysis & Processing) pour le logiciel Digital Micrograph de traitement des images en Microscopie de Lorentz. Celle-ci permet d'analyser et de traiter les données d'une cartographie vectorielle. Ce programme permet notamment la visualisation de la distribution d'un champ vectoriel sous la forme d'un scattergram. Ce scattergram (aussi appelé scatterplot<sup>119</sup>) est un histogramme 2D de la distribution vectorielle (voir aussi l'Annexe E).

Ainsi la constante vectorielle due à l'épaisseur apparaît, dans ce scattergram, comme un décalage de l'origine magnétique. Cette origine correspond normalement au module nul et se situe au centre de l'image du scattergram. Dans le cas particulier où la distribution de vecteurs est isotrope, l'origine magnétique pourra être facilement déterminée comme le centre du disque de distribution des vecteurs. C'est le cas de nos échantillons de FePd à la rémanence : les domaines sont entrelacés (Fig. III.10). Pour cet échantillon à la configuration particulière il est donc possible de soustraire la composante électrostatique déterminée comme la constante vectorielle nécessaire au recentrage du scattergram.

**Cartographie de l'induction magnétique** La reconstruction de la phase d'après l'équation de la TIE, à partir de trois images expérimentales, est présentée sur la Fig. III.15. La phase montre deux types de variations (Fig. III.15-D) : une variation de plusieurs radians le long de la diagonale de l'image, et des variations faibles de l'ordre du *mrad* au niveau des contrastes de Fresnel. On peut reconstruire le scattergram à partir du gradient de la phase :

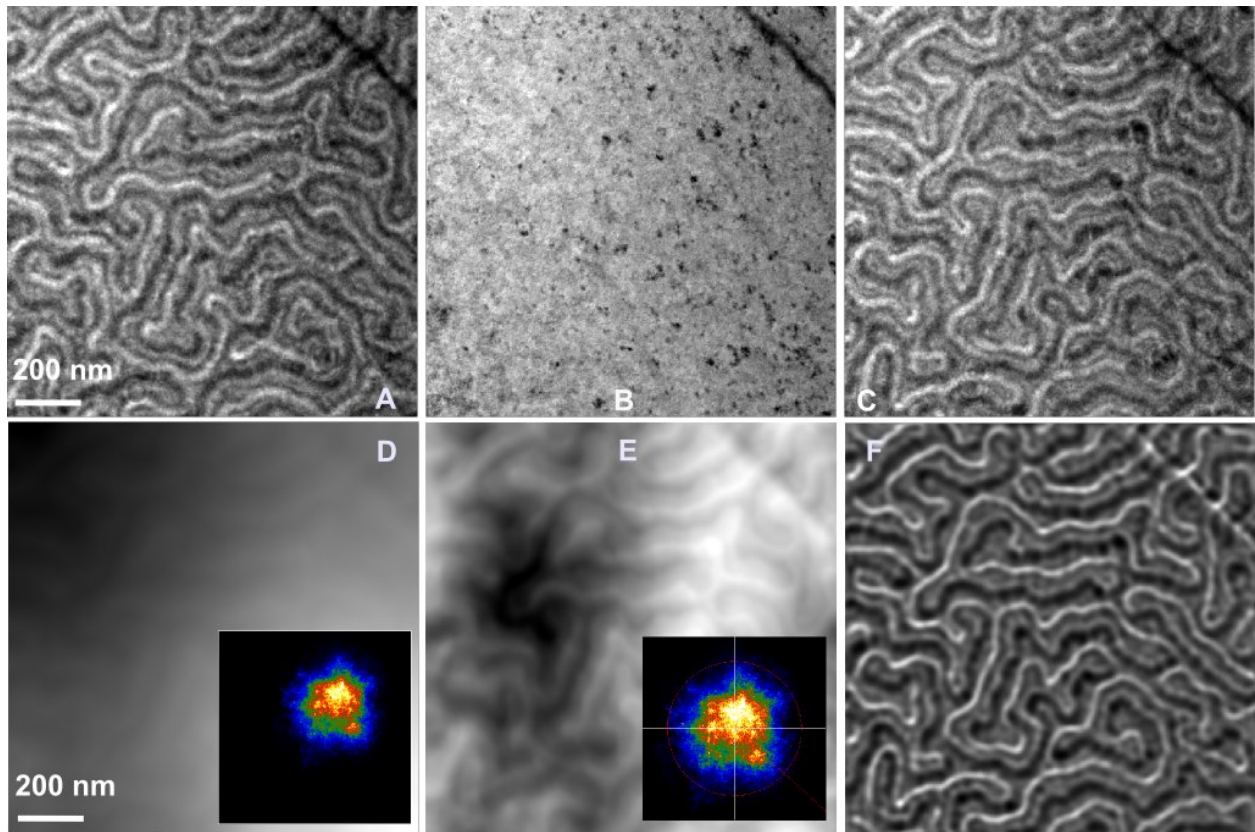
$$\begin{pmatrix} \partial_x \phi \\ \partial_y \phi \end{pmatrix} = C_E \bar{V}_0 \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix} - \frac{e}{\hbar} \begin{pmatrix} \bar{b}_y \\ -\bar{b}_x \end{pmatrix} \quad (\text{III.5})$$

On construit alors directement le Scattergram en fonction du couple  $(\bar{b}_x, \bar{b}_y)$ . Celui-ci présente les 2 caractéristiques attendues (Fig. III.15-D) :

1. une forme de disque, due à la distribution isotrope de l'induction dans la zone d'observation
2. un décalage du centre de ce disque par rapport à l'origine du scattergram

Le recentrage de ce Scattergram fait alors nettement apparaître les différentes contributions de la couche magnétique dans le déphasage (Fig. III.15-E), recalculé à partir des nouvelles composantes.

\*post-doctorant au laboratoire de dec. 2004 à sept. 2006, depuis Maître de Conférence au CEMES de Toulouse



**FIG. III.15:** Principe et résultat de la soustraction de l'information électrostatique à l'information de phase, reconstruite par la résolution de la TIE. **A, B, C.** Contrastes de Fresnel respectivement sous-focalisés, focalisés et sur-focalisés, utilisés pour la reconstruction ( $\Delta f = 20 \mu\text{m}$ ). **D.** Phase brute récupérée par la résolution de la TIE. L'insert montre le scattergram correspondant à la dérivée de la phase suivant X et Y. **E.** Phase recalculée après le retrait d'une constante vectorielle dans le scattergram. **F.** Contrastes de Fresnel simulés ( $\Delta f = 20 \mu\text{m}$ ) à partir de la phase recalculée. *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

A partir de cette nouvelle distribution on peut alors déterminer la configuration magnétique en termes de composantes de l'induction.

Une première façon de valider cette observation est de retrouver, par la simulation, les contrastes de Fresnel. C'est ce qui est proposé sur la Fig. III.15-D. La simulation de contrastes de Fresnel, à partir d'une reconstruction de phase expérimentale, reproduit parfaitement les contrastes observés en Fig. III.15-C. On peut aussi effectuer cette représentation en cartographie couleur (Fig. III.16). L'analyse de cette cartographie de l'induction confirme les observations faites à partir de l'analyse DPC. Les différentes contributions magnétiques sont détaillées sur la Fig. III.16 :

- les parois magnétiques, situées au niveau des longs "fils" d'aimantation, où le module est le plus important (couleurs intenses, ① sur la Fig. III.16-C) ;
- les zones d'aimantation situées sous les domaines, entre les parois, et d'intensité plus faible (couleurs diffuses, ② sur la Fig. III.16-C) ;
- les bandes noires, correspondant à la compensation des composantes planaires de la couche, décrites dans la Fig. III.8 en zones pointillées (③ sur la Fig. III.16-C).

Les domaines présentent une taille caractéristique de 155 nm (contre 160 nm mesuré en MFM). Nous avons un très bon accord entre la cartographie attendue par la simulation et le résultat expérimental (Fig. III.16-C). Mais encore plus que la simple évaluation des dimensions dans ces images, nous pouvons, en tout point, déterminer l'induction magnétique traversée par le faisceau

d'électrons.

**Quantification des images** La soustraction de la composante électrostatique nous donne des images où l'information est quantitative. Nous avons donc mesuré l'induction intégrée en différents points de l'image, et divisé ces valeurs en fonction de l'épaisseur magnétique traversée.

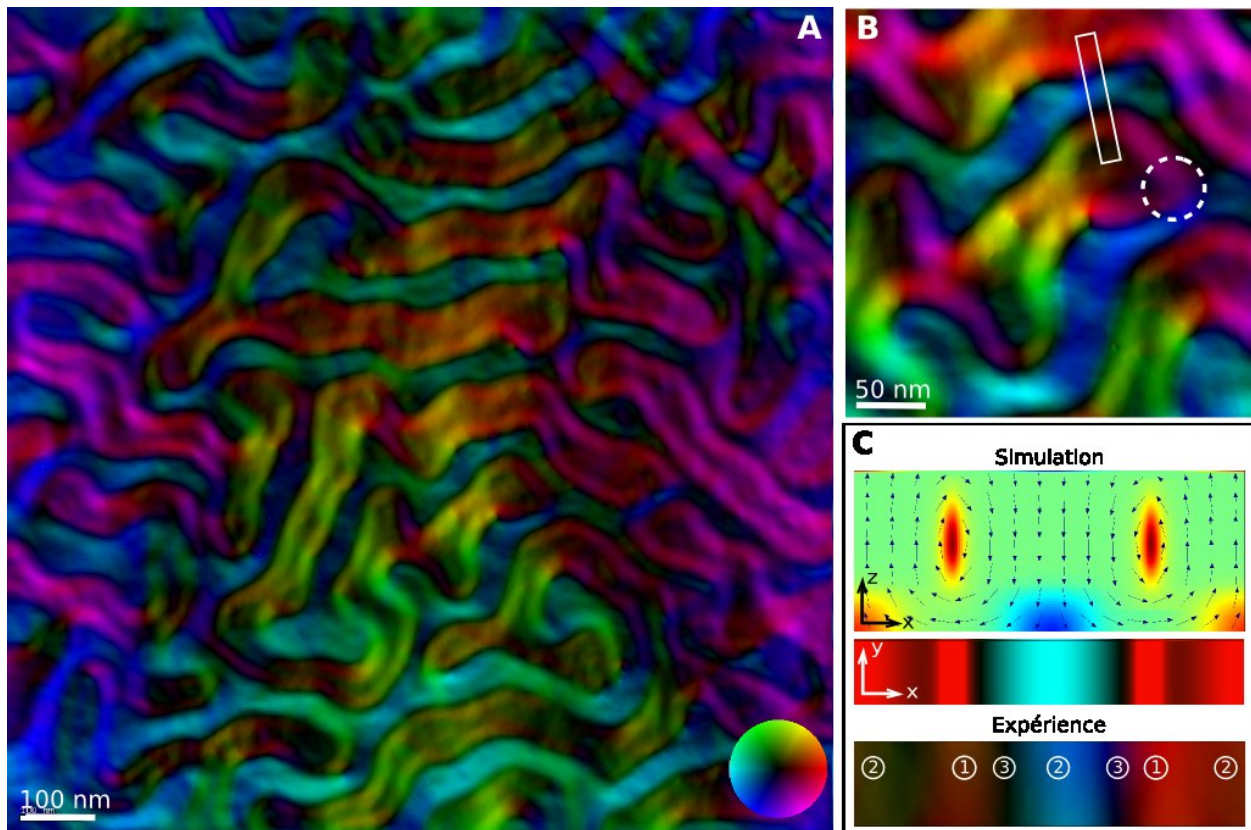
Nous avons considéré une épaisseur de 50 nm pour les parois magnétiques, où l'induction à l'aplomb des parois est en tout point de la couche perpendiculaire au trajet des électrons. Au niveau des domaines, nous ne considérons qu'une épaisseur de 16 nm, puisque seule l'induction de la couche douce affecte les électrons.

On trouve ainsi des valeurs comprises entre 0,6 et 1,3 Tesla au sein des parois magnétiques et des valeurs comprises entre 0,1 et 1,3 Tesla au niveau de la couche douce. Ces données sont en accord avec les mesures issues de la magnétométrie (cf. Tab. III.1).

La diminution du rapport stoechiométrique de Fer, dans la couche douce de  $FePd_2$ , diminue logiquement la valeur du  $M_s$ , même si nous trouvons encore des zones où l'induction dans la couche douce semble être surestimée.

Les mesures ont été effectuées au milieu des parois pour la couche  $L1_0$  et au milieu des domaines pour la couche douce, en plusieurs points de l'image. Nous faisons l'hypothèse que la contribution due aux champs de fuites est négligeable.

En ce qui concerne la couche douce, la seule composante de l'induction que nous sondons au centre des domaines est réellement l'induction magnétique de la couche douce. L'induction dans la couche



**FIG. III.16:** Cartographies couleurs obtenues à partir de la reconstruction focale via la résolution de la TIE. **A** Vue générale de la reconstruction détaillée à la figure précédente. **B** Zoom de la vue en A. La zone rectangulaire présente la zone analysée en C. Le cercle pointillé montre un point singulier décrit dans le texte. **C** Comparaison entre simulation et expérience. La simulation est présentée selon le même code couleur que les simulations précédentes. Une intégration selon l'axe  $z$  est ensuite proposée. Le résultat expérimental est tiré de l'image en B. *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

$L1_0$  ainsi que les champs de fuite sont à ce point purement perpendiculaires. Dans la couche  $L1_0$ , les champs de fuites et la rupture de symétrie du domaine de fermeture de Néel nous permettent d'associer l'induction magnétique sondée à celle présente dans les parois uniquement.

La qualité de ces cartographies magnétiques, à la fois en termes de résolution spatiale et de sensibilité magnétique, nous ont également permis de mettre en évidence des points singuliers au coeur des parois de Bloch. Ils sont indiqués par des cercles pointillés dans la Figure Fig. III.16.

**“Défauts” magnétiques** Ces points présentent une rotation brusque à  $180^\circ$  du sens de l'aimantation le long de la paroi de Bloch. Ces défauts semblent être des *Vertical Bloch Lines* (VBL ou Lignes de Bloch Verticales<sup>120,121,122</sup>). Ces objets magnétiques remarquables ont été longuement étudiés par la simulation, dans le but de les utiliser comme moyen de stockage de l'information<sup>123</sup>. A notre connaissance, aucune méthode de caractérisation n'a encore permis de révéler leur structure. Nous détaillerons plus en détails ces défauts dans la dernière partie de chapitre consacrée à l'aimantation in-situ.

TIE - Résumé

- La reconstruction de phase par résolution de la TIE a donné des résultats décrivant parfaitement l'induction magnétique de notre système bi-couche.
- Cette technique présente une meilleure résolution que la méthode DPC. Nous l'estimons inférieure à 10 nm
- Nous avons proposé une méthode originale de substraction de la contribution électrostatique au déphasage, et ainsi obtenu des cartographies quantitatives de l'induction magnétique.
- Nous avons mis en évidence des défauts magnétiques que nous avons associés à des lignes de Bloch verticales.

#### iv Conclusion sur la vue plane

La reconstruction focale par résolution de la TIE, aisément mise en oeuvre sur nos échantillons, a donné de meilleurs résultats que l'acquisition en DPC.

La méthode de séparation des deux contributions au déphasage est directe et facilement réalisable grâce au Scattergram. Bien qu'appliquée à un échantillon idéal pour ce type d'opération, elle peut tout à fait s'envisager pour des distributions anisotropes. Il faut pour cela pouvoir déterminer le centre de celui-ci. Un couplage antiferromagnétique par exemple, donnerait lieu à deux spots dans le scattergram, l'origine magnétique étant située au milieu de ces deux points. Notons que cette technique n'est valable que pour des échantillons présentant une variation d'épaisseur continue et linéaire, et n'est donc pas applicable aux nanostructures ou aux vues transverses que nous verrons dans la prochaine section. Néanmoins, d'un point de vue uniquement qualitatif, elle permet souvent de s'affranchir de la contribution du substrat au déphasage.

L'holographie électronique n'a pas pu être mise en oeuvre du fait de la géométrie de l'échantillon (pas de présence de trou proche des zones d'observation pour obtenir une phase de référence).

En plus d'imager et de quantifier la distribution magnétique dans ces couches, nous avons également pu mettre en évidence la présence de défauts magnétiques (des lignes de Bloch verticales) qui, nous le verrons en fin de chapitre, jouent un rôle prépondérant dans le processus d'aimantation de ces couches.

#### b Etude en vue transverse

Afin de compléter l'étude de la configuration magnétique de ces couches, nous avons effectué une analyse avec une autre géométrie de la lame mince (Fig. III.17). Dans cette nouvelle géométrie en



vue transverse, le faisceau électronique interagit avec l'aimantation dans les domaines magnétiques. On retrouve ainsi la définition classiquement utilisée pour présenter les contrastes de parois (Fresnel) et de domaines (Foucault).

L'échantillon utilisé ici est légèrement différent de celui que nous avons étudié pour la vue plane. La couche douce de  $\text{FePd}_2$  est remplacée par une couche de  $\text{FePd}$  de 15 nm déposée à température ambiante sur un buffer de Palladium (47 nm), et donc chimiquement désordonnée. Elle est donc dépourvue d'anisotropie magnétique cristalline. Ce nouvel empilement nous permet notamment d'aligner les domaines magnétiques en rubans de façon très stable<sup>108</sup>.

La configuration magnétique attendue pour ce film est très similaire à la précédente. La différence vient principalement de la valeur de l'aimantation à saturation dans la couche douce : du même ordre que pour la couche ordonnée (cf. Tab. III.1). L'intérêt de ce nouvel empilement est l'obtention d'une structure magnétique en rubans parallèles (Fig. III.17-A).

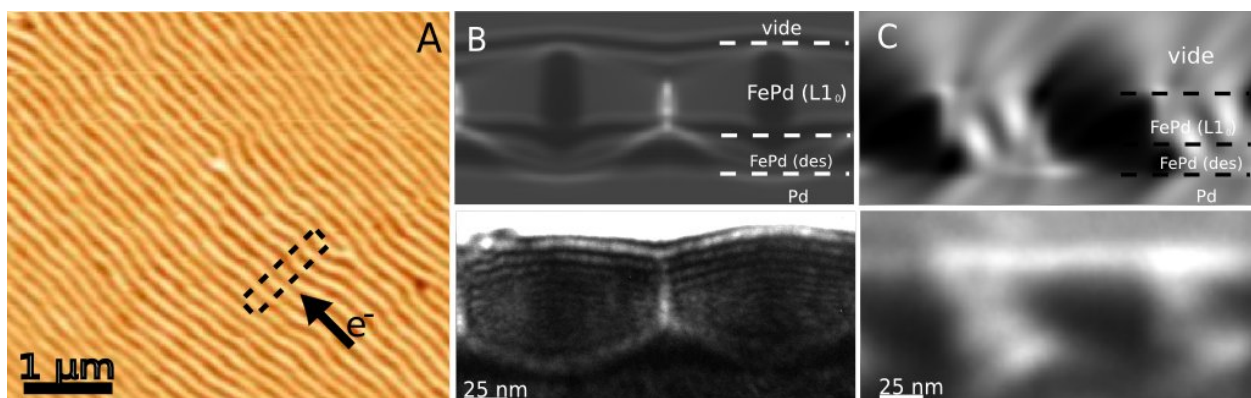
Cette configuration en rubans parallèles nous a permis de préparer une lame pour l'observation en vue transverse, en alignant ces rubans avec la trajectoire des électrons (ceci est réalisé en allumant la lentille objectif avant l'observation).

Durant tout le processus d'amincissement (méthode classique de préparation, par collage de deux morceaux, polissage mécanique et attaque ionique) et avant chaque nouvelle modification de la structure, nous avons saturé l'échantillon par précaution. Cette saturation a été effectuée dans le plan de la couche, le long de l'axe d'amincissement. Les domaines magnétiques sont ainsi alignés avec l'axe optique du microscope dans la lame mince finale.

### i Contrastes de domaines et de paroi

Les premiers résultats d'imagerie magnétique sont présentés en Fig. III.17-B et C. Les contrastes de Fresnel et de Foucault s'accordent avec nos simulations. Néanmoins, on observe sur le cliché de Fresnel expérimental des franges d'interférence dues au bord de la lame mince. Ces contrastes sont aussi des contrastes de Fresnel mais d'origine topographique. Ces franges d'interférence apparaissent au niveau des interfaces et au bord de la lame. L'étude de ces franges peut permettre d'estimer quantitativement le profil d'épaisseur de l'échantillon ainsi que la nature des interfaces<sup>117</sup>.

Nous avons donc sur notre cliché expérimental en contraste de Fresnel une information magnétique mélangée à plusieurs informations relatives à la nature et l'épaisseur des couches de la lame mince.



**FIG. III.17:** **A** Vue MFM de l'échantillon  $\text{FePd}_{L1_0} \setminus \text{FePd}_{desord.}$ . La zone en pointillés décrit la géométrie utilisée pour la lame mince de microscopie. **B** Simulation (haut -  $\Delta f = 15$  nm) et cliché expérimental (bas -  $\Delta f = 15$  nm) de Fresnel de l'échantillon (*Images obtenues avec le microscope FEI Titan*). **C** Simulation (haut - Diaphragme  $0.1 \mu\text{m}$ , centré en  $(0,0) \text{ nm}^{-1}$ ) et cliché expérimental (bas - Diaphragme  $0.1 \mu\text{m}$ ) de Foucault de l'échantillon. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*.

Cette figure d'interférence est perturbée par l'information magnétique de l'échantillon. Il est donc possible d'effectuer de l'interférométrie purement in-line<sup>124</sup> sur un simple cliché de Fresnel. Le lecteur intéressé pourra trouver le détail d'une étude préliminaire par la simulation en Annexe I.

## ii Etude en DPC

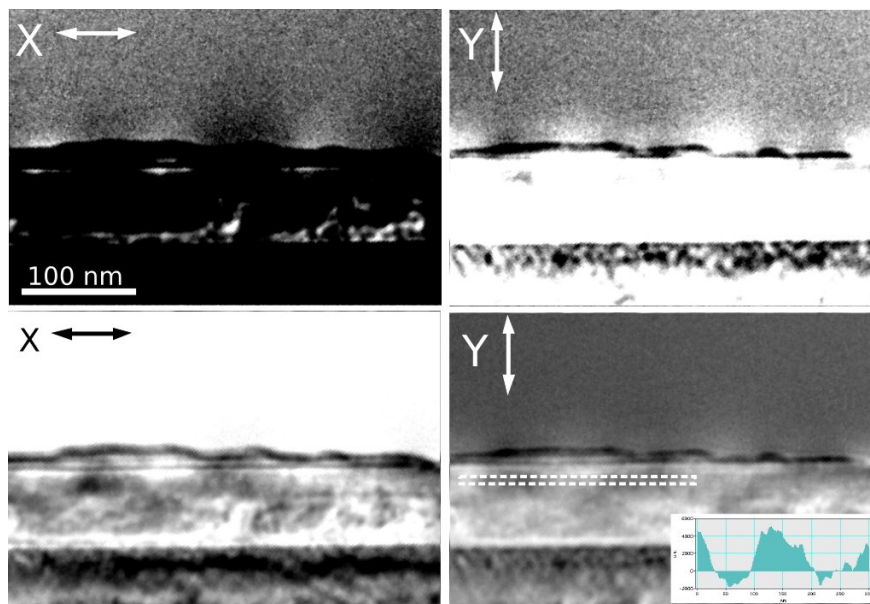
Cette première étude DPC a été menée sur le JEOL 3010. L'imagerie de Foucault et l'implémentation du pilotage du microscope n'étant pas encore réalisées sur le TITAN, nous ne pourrions comparer les 3 techniques, bien que l'échantillon s'y prête parfaitement.

La Fig. III.18 présente le résultat d'une acquisition DPC sur cette lame mince. Nous avons accès directement à l'induction magnétique dans la couche (images du bas) et dans le vide (champs de fuite - images du haut). La période mesurée sur les domaines et sur les champs de fuite est de 100 nm, ce qui est conforme à celle mesurée en MFM.

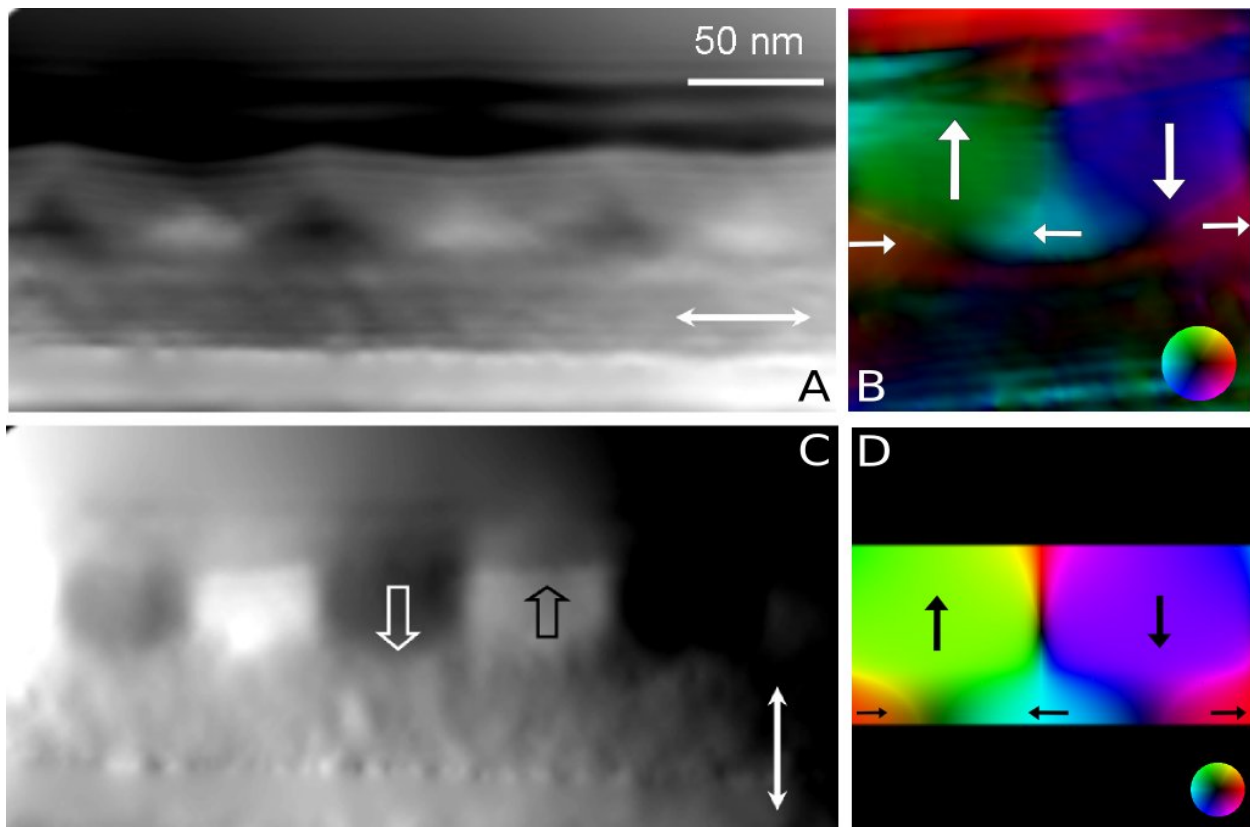
Nous sommes ici gênés dans l'analyse des données par de nombreux contrastes issus de l'atténuation de l'amplitude de l'onde dans l'objet. Les artefacts sont principalement dus au mauvais alignement des images. Le traitement numérique est en effet perturbé par les forts contrastes d'amplitude présents dans l'image. De plus des aberrations (la défocalisation mais aussi l'astigmatisme et le coma), fortement dépendantes du tilt du faisceau électronique, gênent cette reconstruction. Les tilts du faisceau utilisé sont relativement importants et accentuent l'effet de ces aberrations entre les différentes images de l'acquisition.

Néanmoins, la possibilité d'extraire l'information des champs de fuite en même temps que l'information au sein de la couche a rarement été rapportée dans la littérature<sup>125</sup>.

Il serait très important de réussir l'implémentation du DPC sur le Titan, pour pouvoir obtenir une information de meilleure résolution spatiale. Signalons une dernière fois que la principale limitation



**FIG. III.18:** Acquisition DPC (diaphragme  $0.1 \mu\text{m}$  - 120 images) sur l'échantillon en cross-section. Les 2 images du haut montrent les 2 composantes de l'aimantation. Le contraste a été choisi pour faire ressortir les champs de fuite. Les 2 images du bas présentent la même information mais affichée avec un contraste différent. Le profil dans l'image de droite est un profil le long du plan de la couche pour la composante verticale. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*



**FIG. III.19:** Reconstruction par résolution de la TIE de la distribution magnétique en vue transverse. **A, C.** Composantes horizontales et verticales de l'induction déduites de l'image de phase. **B** Cartographie couleur obtenue à partir des composantes de l'induction. **D** Cartographie couleur de l'aimantation obtenue par simulation micromagnétique (Fig. III.8). *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

de cette méthode est sa dépendance à la lentille utilisée pour former l'image. Elle mériterait une comparaison dans les mêmes conditions que les autres techniques d'imagerie magnétique en TEM.

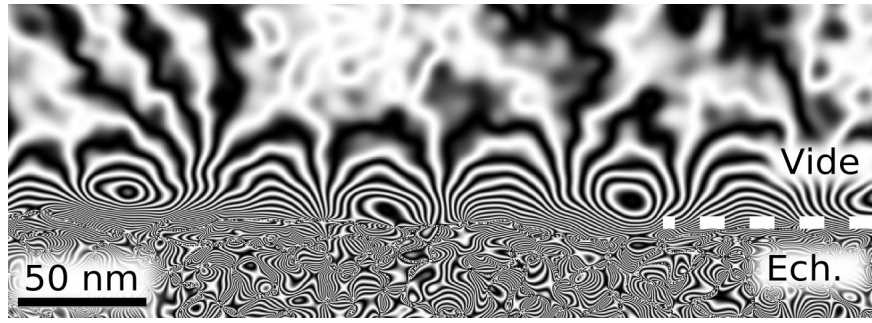
### iii Etude par reconstruction via la TIE

L'analyse de cet échantillon de FePd sur le TITAN a permis d'observer des contrastes de Fresnel avec une très bonne résolution (Fig. III.17). Nous avons donc effectué une reconstruction focale via la TIE sur cette couche. Elle est présentée en Fig. III.19.

Nous pouvons accéder directement à l'information magnétique dans la couche ordonnée (Fig. III.19-C) et dans la couche douce (Fig. III.19-A). La structure magnétique du système est ainsi totalement reconstruite (Fig. III.19-B et D). La résolution obtenue est de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Elle permet notamment d'observer la dissymétrie du domaine de fermeture de Néel, plus large en-dessous des parois.

Nous pouvons difficilement déterminer ici l'information de champs de fuite. Les contrastes de Fresnel dans le vide sont très faibles et nous ne pouvons les distinguer. Il est donc impossible de retrouver un signal significatif dans la reconstruction focale. Si cette contribution existe, elle est noyée dans le bruit de l'image.

La méthode décrite dans la section précédente pour retirer la contribution du potentiel interne ne peut pas être utilisée ici (la variation de l'épaisseur n'est pas continue). Nous effectuons néanmoins le recentrage du scattergram pour éliminer une partie de cette contribution. Nous avons essayé une



**FIG. III.20:** Champs de fuite sur l'échantillon de FePd, résolus par holographie électronique. L'image est une visualisation du déphasage de l'onde en  $\cos(20 \times \Phi)$ . Images obtenues avec le microscope FEI Titan

autre méthode, consistant à effectuer cette reconstruction sur l'échantillon saturé (reconstruction effectuée en mode imagerie conventionnelle, lentille objectif allumée) pour obtenir une information purement électrostatique. Malheureusement elle n'a pas permis de calculer une information de phase exploitable, permettant de la soustraire à notre information totale.

Dans le cas de la vue plane, nous avons une valeur connue de l'épaisseur magnétique traversée (les électrons traversant la totalité de la couche déposée). Nous ne savons pas ici quelle est cette épaisseur magnétique : elle dépend de la préparation de la lame mince. Une mesure par filtrage en énergie permet de déterminer l'épaisseur par la méthode des électrons inélastiques<sup>126</sup>. Nous avons calculé un libre parcours moyen inélastique dans le FePd de 112 nm (cf. Annexe C). La cartographie d'épaisseur nous donne ainsi une épaisseur de la lame d'environ 50 nm.

Les valeurs de  $\mu_0 M_s$  que nous mesurons alors sont de l'ordre de 0,8 Tesla. La différence avec la valeur attendue vient probablement d'une mauvaise estimation de l'épaisseur ainsi que d'une erreur lors de la soustraction de la contribution électrostatique avec notre méthode.

#### iv Etude par Holographie

Afin de compléter l'étude magnétique en vue transverse de ce système, nous avons effectué des mesures par Holographie Électronique. Le travail présenté ici a tout d'abord été effectué en collaboration avec le CEMES de Toulouse (microscope Tecnaï), avec Etienne Snoeck et Christophe Gatel. Ceci m'a permis notamment d'apprendre la technique d'holographie électronique et ses techniques associées pour soustraire la composante du potentiel interne. Les mesures ont ensuite été répétées sur le Titan et ont fourni des résultats similaires.

Un premier hologramme, acquis sur une zone épaisse, permet de déterminer la distribution des champs de fuite dans le vide avec une très bonne résolution (inférieure à 10 nm). Dans le vide, la seule contribution au déphasage est issue des champs de fuite (Fig. III.20). Contrairement aux résultats rapportés dans la littérature sur le FePt<sup>127</sup>, nous avons une information périodique qui s'étale sur la totalité de l'image. Nous pouvons donc en déduire que la configuration en domaines est très stable, et ce, malgré l'amincissement.

Nous avons employé une autre technique pour séparer l'information magnétique de l'information électrostatique. Celle-ci consiste à acquérir deux fois l'information de phase, mais avec des contributions magnétiques opposées (elle a été proposée par R. Dunin-Borkowski<sup>128</sup>).

Les deux hologrammes sont donc acquis sur la même zone, avant et après le retournement de l'échantillon effectué à l'extérieur du microscope (Fig. III.21). Les deux informations de phase présentent alors les mêmes informations issues du potentiel interne, mais des informations magnétiques inversées.

La demi-somme de ces deux déphasages permet d'obtenir directement la contribution électrostatique, tandis que la demi-différence permet de supprimer cette contribution et d'obtenir une contribution purement magnétique :

$$\begin{aligned}\phi_{magn.} &= \frac{1}{2} * [\phi_+ - \phi_-] = \frac{e}{\hbar} [\bar{A}_z \Delta t(x, y)] \\ \phi_{M.I.P.} &= \frac{1}{2} * [\phi_+ + \phi_-] = C_E V_{int}(x, y) \Delta t(x, y)\end{aligned}\quad (\text{III.6})$$

La Fig. III.22 présente le résultat de cette opération. Cette technique expérimentale demande des précautions importantes. Il faut veiller à conserver l'angle formé par l'aimantation dans les domaines et le trajet des électrons (idéalement, ils sont perpendiculaires). Si on effectue un alignement de l'échantillon en axe de zone ([110] dans notre géométrie) des effets dynamiques perturbent le signal et gênent la reconstruction de phase. Nous avons donc aligné à chaque fois l'échantillon avec un certain angle par rapport à cet axe de zone (de l'ordre de quelques degrés).

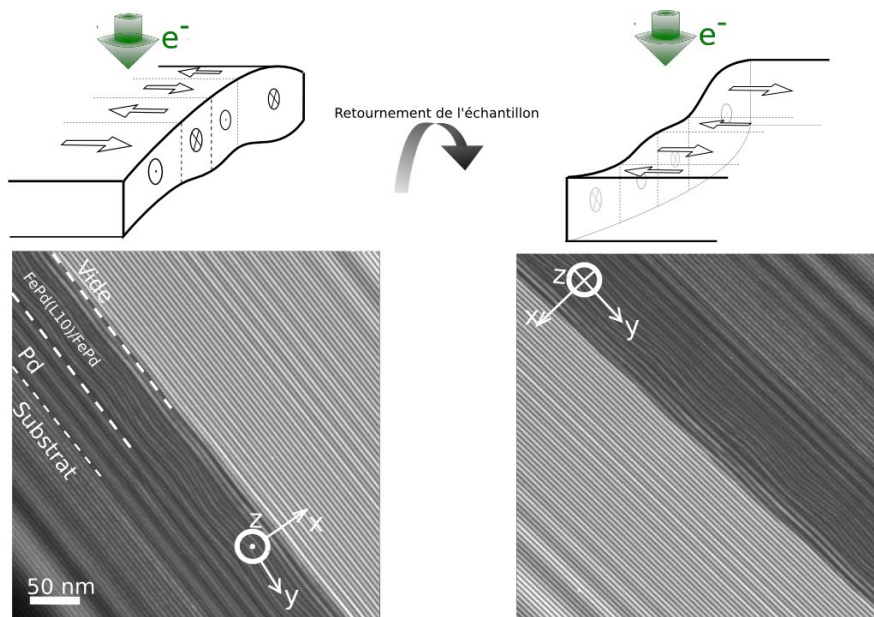
De plus, la rotation de l'échantillon par rapport à un axe de tilt (y) induit une symétrie entre les deux images. Nous devons donc corriger numériquement l'une des deux images avec la même symétrie.

Après ces manipulations délicates, il faut parfaitement recalibrer les deux images l'une par rapport à l'autre. Ceci a été effectué à l'aide d'une routine, développée sous Digital Micrograph par C. Gatel.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe sur la reconstruction par la TIE, il est indispensable dans cette géométrie de connaître l'épaisseur magnétique traversée pour obtenir une information quantitative. C'est à l'aide de la demi-somme des phases que nous obtenons cette information.

Nous avons calculé le Potentiel Interne Moyen (MIP) de chaque couche de l'échantillon. Ce calcul repose sur la connaissance des paramètres cristallins de l'échantillon ainsi que sur le facteur de diffusion atomique des différentes espèces chimiques. Une description précise de ce calcul peut être trouvée en Annexe B. Plusieurs valeurs sont par ailleurs données dans la littérature<sup>65</sup>.

Nous avons calculé le MIP pour le FePd (21.71 V), et pour le FePd désordonné (21.9 V). Les valeurs pour le Platine (22.81 V), et le Palladium (22.37 V) sont données dans la ref<sup>65</sup>. La valeur du MIP



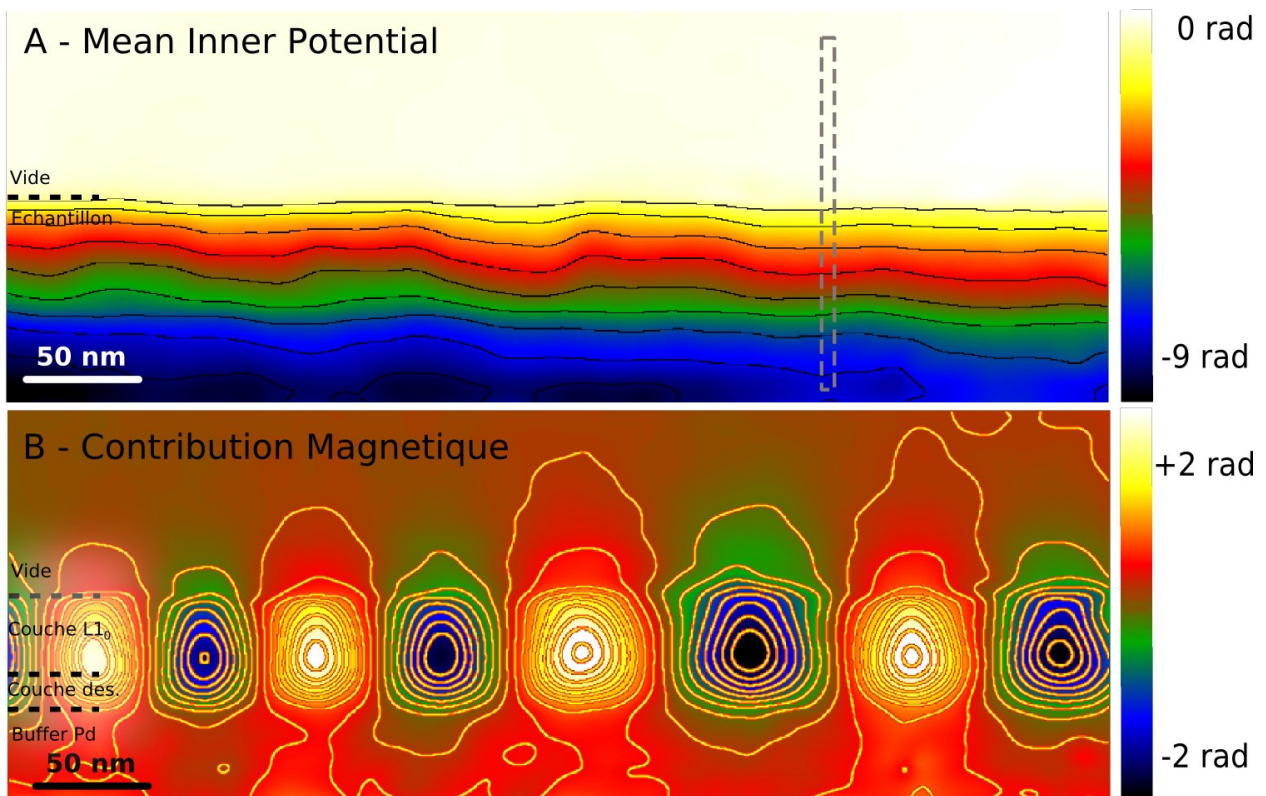
**FIG. III.21:** Principe du retournement de l'échantillon pour l'Holographie quantitative. Dans les deux différentes configurations, l'épaisseur intégrée est identique, par contre l'aimantation traversée dans la couche est de sens opposé. *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

est donné avec une certaine incertitude (à commencer par la convention sur le signe de ce potentiel, négatif<sup>65</sup> ou positif<sup>129</sup>). On peut estimer une précision de l'ordre de 1 V sur les calculs. Pour les épaisseurs considérées (quelques dizaines de nanomètres), ceci engendre une incertitude sur la mesure de l'épaisseur de l'ordre de 5 nm.

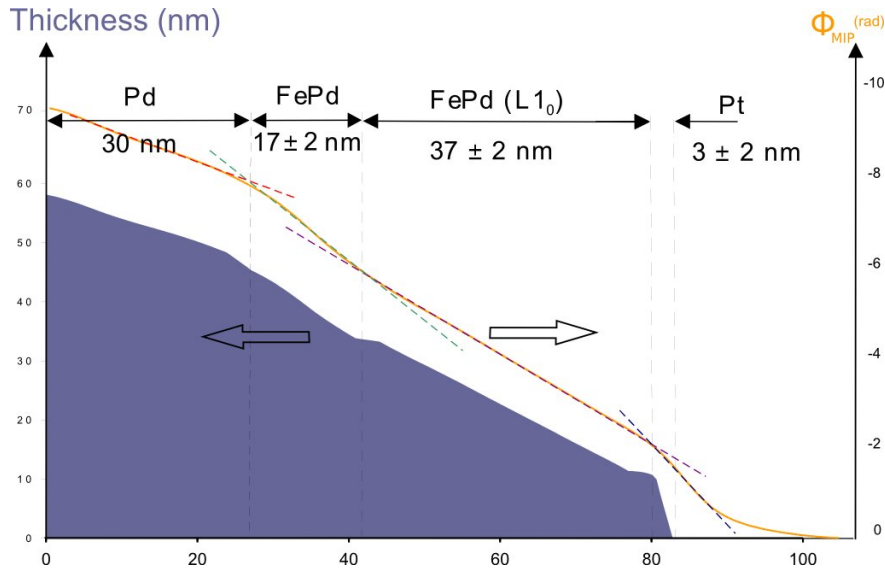
La Fig. III.23 présente le profil expérimental du déphasage électrostatique (III.6). Nous avons tout d'abord analysé ce profil à l'aide de régressions linéaires pour chaque couche du film. A partir des équations de droites, nous avons calculé l'épaisseur des différentes couches le long de l'axe de croissance (qui se révèlent être identiques à celles attendues). Cette détermination nous a ensuite permis d'obtenir le profil de l'épaisseur, tracé sur la Fig. III.23. La lame présente une épaisseur moyenne (au niveau de la couche L1<sub>0</sub>) de 30 nm. Cette valeur est relativement faible devant les dimensions de la couche magnétique (50 nm d'épaisseur dans la direction de l'axe de croissance), nous y reviendrons en fin d'analyse.

La connaissance de l'épaisseur permet alors de déterminer l'induction magnétique à partir de la deuxième image de différence de phases (Fig. III.22-B). La dérivée de la phase dans les deux directions horizontales et verticales nous apporte alors l'information relative au produit de l'induction magnétique par l'épaisseur :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi_{magn.}}{\partial x} &= \frac{e}{\hbar} \bar{b}_y \cdot \Delta t \\ -\frac{\partial \phi_{magn.}}{\partial y} &= \frac{e}{\hbar} \bar{b}_x \cdot \Delta t \end{aligned} \quad (\text{III.7})$$



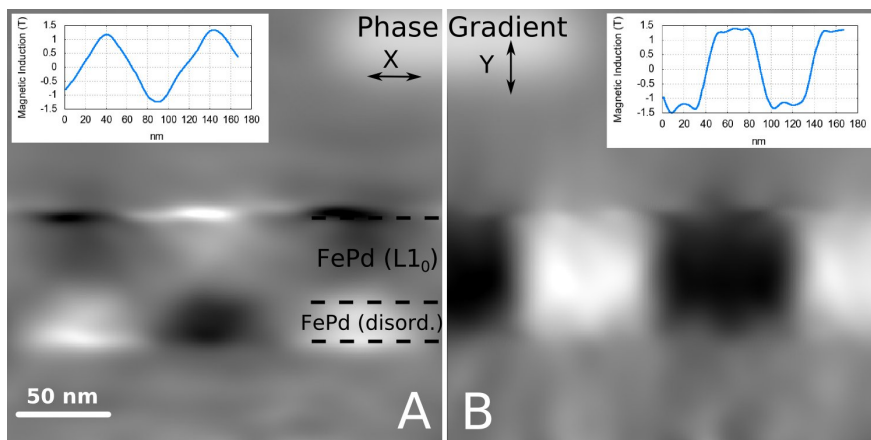
**FIG. III.22:** Séparation des contributions magnétique et électrostatique. L'image supérieure est la contribution du potentiel interne calculée à partir de la demi-somme de l'Eq. III.6. Les lignes d'isophasse proposées présentent un écart de 1 rad. La ligne pointillée indique le profil utilisé dans la Fig. III.23. L'image inférieure est la contribution magnétique. L'écart entre les lignes d'isophasse est de 0,25 rad. L'échelle de couleur utilisée est une échelle de température (allant du bleu foncé au jaune clair). *Images obtenues avec le microscope FEI Tecnai*



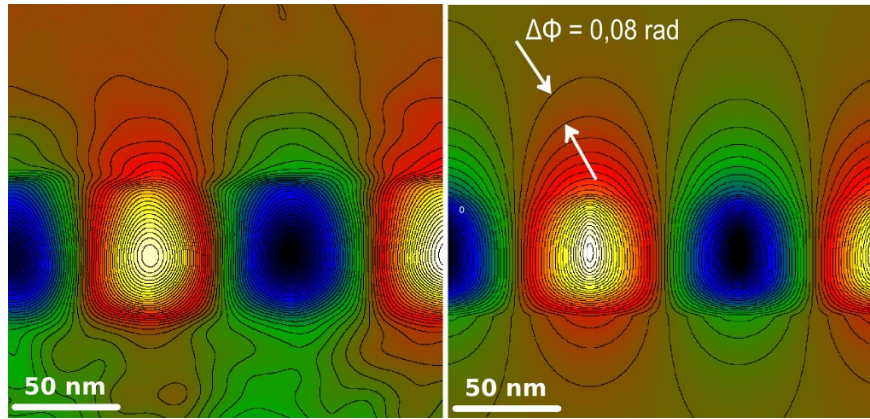
**FIG. III.23:** Profil d'épaisseur extrait de l'information de phase de la Fig. III.22. La courbe présente la variation de la composante électrostatique du déphasage (y sont présentées les régressions linéaires correspondant à chaque espèce). Le profil violet présente l'épaisseur de la couche déterminée à partir des potentiels internes calculés pour chaque élément chimique.

Ces deux dérivées (présentées en Fig. III.24) sont ensuite divisées par le facteur  $\frac{e}{\hbar} = \frac{\Phi_0}{\pi}$  (où  $\Phi_0$  est le quantum de flux magnétique - voir aussi Annexe A) et l'épaisseur en tout point, déterminée à partir de l'image du déphasage électrostatique. Le niveau de gris des images de la Fig. III.24 est ainsi calibré en Tesla.

On trouve un  $\mu_0 M_s$  moyen de 1,3 T dans les domaines et de 1,2 T dans la couche douce. Ces valeurs sont en parfait accord avec celles trouvées pour la vue plane et celles issues de la magnéto-métrie. Comme attendu, la valeur de l'aimantation dans la couche douce est ici plus importante que dans le cas de la vue plane. Les zones de forte intensité, au bord de la lame, sont des artefacts de mesure. Ceux-ci peuvent s'expliquer par un changement de focalisation lors de l'acquisition des deux hologrammes. En effet, la focalisation magnétique et topographique ne sont pas identiques.



**FIG. III.24:** Les 2 composantes de l'induction magnétique sont présentées. La dérivée de la phase selon la verticale (gauche) et l'horizontale (droite) de l'image permettent de déterminer les composantes de l'induction perpendiculairement à ces directions.



**FIG. III.25:** Comparaison entre la phase purement magnétique déterminée par nos expériences, et la phase simulée à partir du micro-magnétisme. Dans les 2 cas, l'écart entre les lignes d'isophase est de 0.08 rad.

Si la mise au point est réalisée pour minimiser les contrastes de Fresnel magnétiques, on observe alors un résidu de franges de Fresnel dues à la topographie, et réciproquement. Lors de l'acquisition de nos hologrammes, nous avons favorisé la focalisation magnétique. La focalisation topographique n'est donc pas identique dans les deux images et provoque une perturbation dans l'image de phase électrostatique. L'épaisseur est ainsi sous-évaluée à ce niveau, ce qui entraîne une sur-estimation de l'induction magnétique.

Pour compléter ces résultats, une comparaison entre la phase de l'onde objet et celle calculée à partir de la configuration micromagnétique (calculée par GL-FFT) est présentée Fig. III.25. Les lignes isophases représentent les lignes de flux magnétique. L'accord entre la simulation et l'expérience est très bon. Il est donc possible de résoudre sur la même image les lignes de flux dues aux champs de fuite (dans le vide mais aussi dans le substrat) et celles de l'induction dans les domaines.

Ce type d'image pourrait permettre d'étudier le retournement local de l'aimantation dans de tels systèmes à l'aide d'une pointe MFM par exemple. Il sera aussi très intéressant d'appliquer ce type d'étude à des systèmes plus complexes, où la configuration magnétique est inconnue (l'interaction dipolaire entre plots magnétiques par exemple)

#### Conclusion sur la vue Transverse

- Nous avons confirmé les résultats des simulations micromagnétiques et mis en évidence la stabilité magnétique du film
- Nous avons évalué quantitativement l'induction magnétique dans la couche
- Il est possible d'effectuer une mesure à la fois sur l'induction dans la couche et sur les champs de fuites rayonnés
- Nous avons pu comparer durant cette étude la résolution de deux microscopes holographiques : le Tecnaï et le Titan. La différence entre les deux est là encore déterminée par la qualité de la lentille utilisée pour l'imagerie. Les hologrammes sont nettement plus contrastés sur le Titan que sur le Tecnaï. Cette différence laisse penser que le premier est plus sensible aux faibles moments magnétiques.

Il nous manque une dernière expérience à cette étude en vue transverse : une acquisition en DPC sur le TITAN pour permettre la comparaison de toutes les techniques sur le même microscope.

La technique DPC n'a certainement pas pu montrer tout le potentiel que lui confère sa modulation de sensibilité avec le nombre d'images acquises. Il faudra pouvoir l'associer à une résolution spatiale



élevée ainsi qu'à une convergence minimale. La reconstruction focale, quant à elle, a permis de décrire avec une résolution inférieure à 10 nm, la structure magnétique de notre lame mince. Elle présente, contrairement aux deux autres techniques, l'avantage d'être très facile à implémenter (elle est la seule, pour l'instant, implémentée à la fois sur le JEOL 3010 et le Titan).

Nous allons maintenant aborder une autre spécificité de l'imagerie magnétique dans un TEM : la possibilité d'effectuer des études dynamiques en appliquant un champ magnétique supérieur au Tesla.

### III.3 Études In-situ

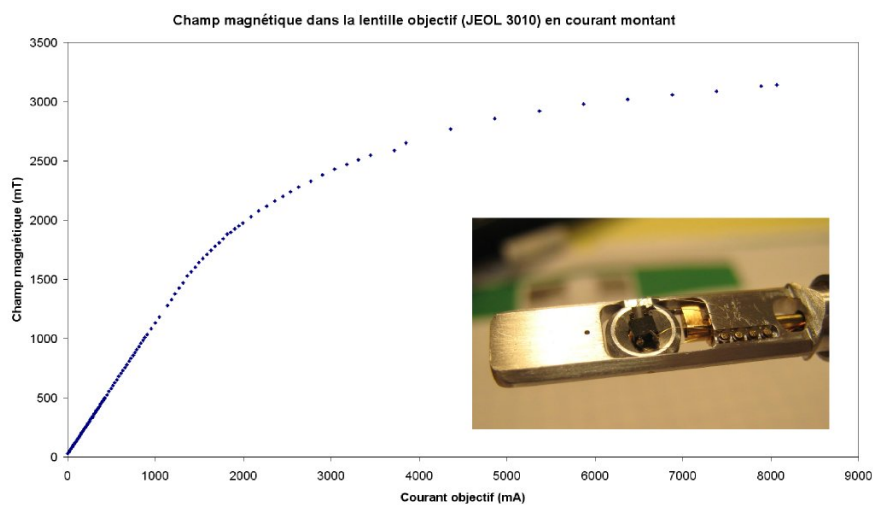
Comme il a été décrit dans les paragraphes précédents, la microscopie électronique est un outil très puissant pour l'analyse magnétique à l'échelle du nanomètre. Elle permet d'obtenir des cartographies 2D de la distribution de l'induction magnétique avec une résolution proche du nanomètre. Outre cet aspect descriptif elle permet des mesures quantitatives. Elle donne ainsi accès à des valeurs locales de l'induction dans les couches minces.

La configuration magnétique de nos échantillons est donc maintenant connue. Nous nous attacherons dans cette section à étudier son évolution sous la contrainte d'un champ magnétique lors d'un cycle d'aimantation.

Le champ magnétique est appliqué in-situ dans le microscope et ainsi couplé à l'imagerie décrite jusqu'à présent. Ce champ est produit par la lentille objectif du microscope qui est normalement éteinte pour l'imagerie magnétique. L'utilisation d'une telle bobine a deux avantages :

- Une très bonne précision du pas de champ appliqué : le contrôle des courants dans les lentilles a une précision de l'ordre du mA, soit une précision de l'ordre du mT pour le champ généré.
- La possibilité d'appliquer des champs magnétiques très importants : dans l'entrefer des pièces polaires de la lentille objectif en fonctionnement normal règne un champ magnétique de l'ordre de 2 à 3 Tesla.

Pour pouvoir utiliser la lentille objectif dans le but d'appliquer des champs magnétiques il a été tout d'abord nécessaire de calibrer ce champ produit en fonction du courant d'excitation. Nous avons ef-



**FIG. III.26:** Courbe de calibration du champ produit dans la pièce polaire du JEOL 3010 en fonction du courant d'excitation de la bobine objectif. L'insert est une photographie du montage de la sonde de Hall sur le porte-objet du Titan, qui nous a permis d'effectuer la calibration de sa lentille objectif.

fectué cette calibration sur les deux microscopes utilisés au laboratoire pour l'imagerie magnétique : le JEOL 3010 et le FEI-Titan.

Nous avons choisi deux méthodes. Pour le JEOL 3010, nous avons placé une sonde de Hall sur une canne afin de l'insérer dans l'entrefer de la pièce polaire. Il a donc été nécessaire de démonter le sas d'introduction pour pouvoir introduire la canne dans le microscope. Le Titan en revanche est équipé d'un porte objet pourvu de quatre contacts électriques. Il a donc été possible de mettre en place une sonde de Hall en lieu et place de l'échantillon (cf. insert Fig. III.26) et ainsi de réaliser la calibration en fonctionnement normal.

Ces mesures ont permis de déterminer la gamme de champs applicables. Celle du JEOL est donnée en Fig. III.26. Nous pouvons faire plusieurs remarques sur ces calibrations :

- La lentille objectif du JEOL 3010 ne peut être excitée qu'avec un courant positif. Ceci limite donc à l'application du champ dans un seul sens.
- Cette lentille présente une rémanence de 30 mT.
- Le contrôle de la lentille du TITAN est bridé par le constructeur pour des contraintes de puissance constante dans les lentilles (stabilité thermique). La limite supérieure du champ applicable est donc de 500 mT. L'avantage est par contre que ces 500 mT peuvent être appliqués positivement ou négativement le long de l'axe optique.

Néanmoins, nous ne pourrions atteindre des champs au delà de 1,5 Tesla. En effet, quand nous commençons à atteindre la gamme de champs utilisées habituellement pour l'imagerie (le régime asymptotique décrit sur la Fig. III.26) l'image commence à devenir trop fortement déformée.

Nous avons mené deux types d'étude en aimantation in-situ sur notre système. Une première étude en aimantation perpendiculaire à la couche suivant l'axe facile, est présentée dans la section suivante. La deuxième, effectuée dans le plan de la couche suivant l'axe difficile (à partir de l'échantillon en vue transverse) n'a pas encore donné de résultats interprétables. Elle est néanmoins disponible en Annexe J. Les contrastes de Fresnel seront majoritairement utilisés pour ce type d'analyse. Nous utiliserons seulement quelques reconstructions de phase via la TIE pour illustrer le propos. L'holographie ou le DPC sont des techniques trop longues à mettre en place pour réaliser des études dynamiques. En effet, le DPC nécessite de très longs temps d'acquisition. De plus, pour cette étude nous n'utiliserons pas le Titan (donc pas l'holographie) car la gamme de champs n'est pas suffisante pour ces systèmes où la saturation n'intervient que pour des champs appliqués de l'ordre de 800 mT.

### a Cycle d'aimantation perpendiculaire

Si l'étude d'échantillons présentant une anisotropie perpendiculaire en vue plane n'est a priori pas un cas standard pour la microscopie de Lorentz, en revanche l'étude sous champ est très intéressante. En effet, la direction du champ appliqué est parallèle à l'axe de facile aimantation de la couche à anisotropie perpendiculaire. Nous pouvons ainsi décrire la totalité du cycle d'hystérésis le long de l'axe facile. La moitié du cycle permet par symétrie de décrire intégralement le cycle de l'échantillon.

La Fig. III.27 présente un demi-cycle d'hystérésis acquis par VSM. Les images de Fresnel présentées sont prises pour divers champs lors du processus d'aimantation. Le bon accord entre les images obtenues et le cycle du VSM nous permet déjà de valider la calibration de la lentille objectif.

On observe sur ce cycle que l'aimantation se traduit par une diminution des domaines opposés au champ, au profit des domaines alignés avec celui-ci. La forme des domaines opposés est préservée durant le début de la montée en champ, ceux-ci voient uniquement leur taille se réduire (Fig. III.27 - images 1 à 5). Avant la saturation, ces domaines se scindent en petites bulles (Fig. III.27 - image 6).

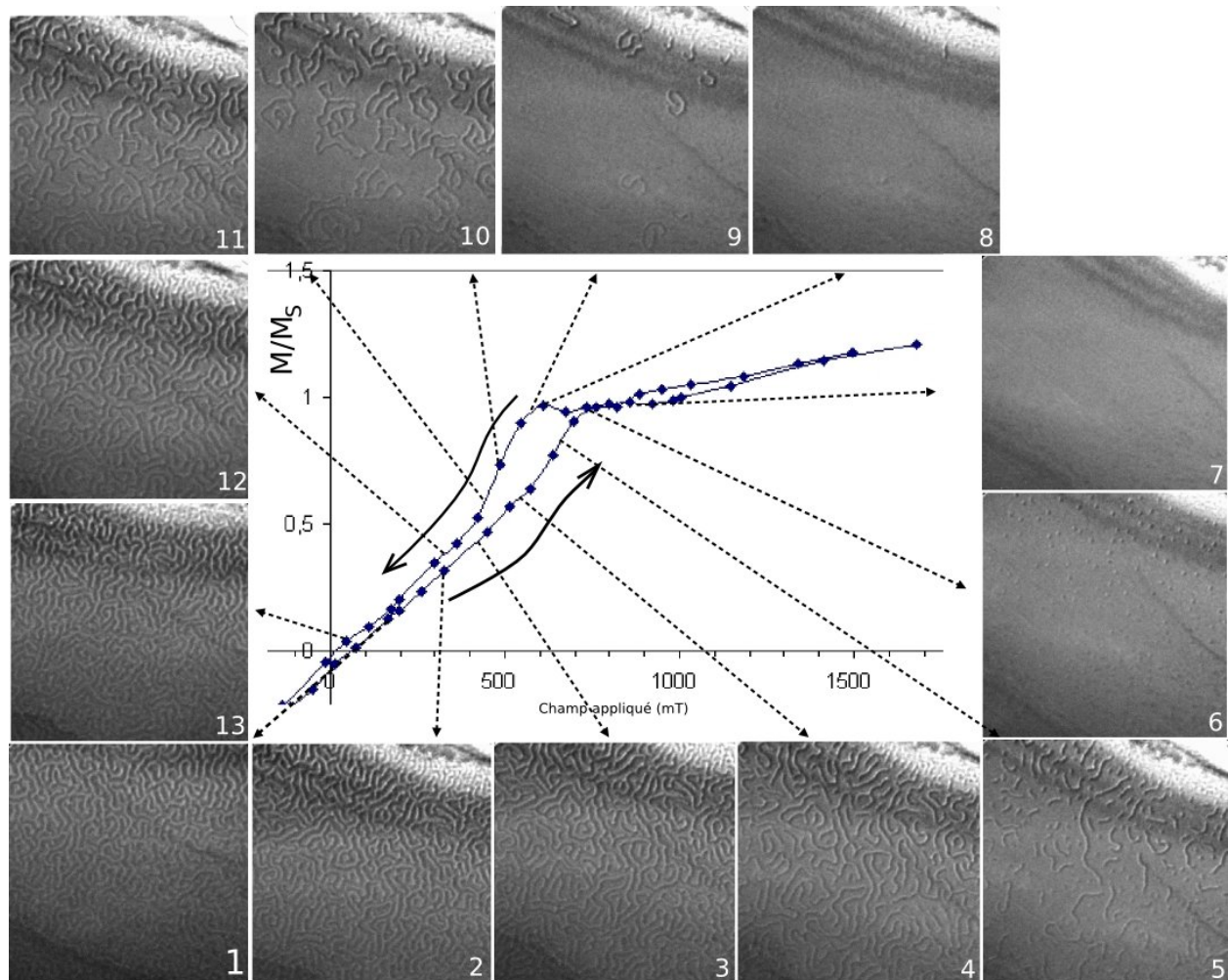
A fort champ (Fig. III.27 - image 7), plus aucun contraste de Fresnel n'est observé, ce qui confirme

l'état de saturation de la couche. Le retour de la saturation est soudain (Fig. III.27 - images 9 et 10). De grands domaines apparaissent, puis s'agrandissent au fur et à mesure de la descente en champ. Cette augmentation de taille se réalise soit de manière continue (conservation de la forme originale), soit par la formation de ramifications nouvelles sur les domaines existants.

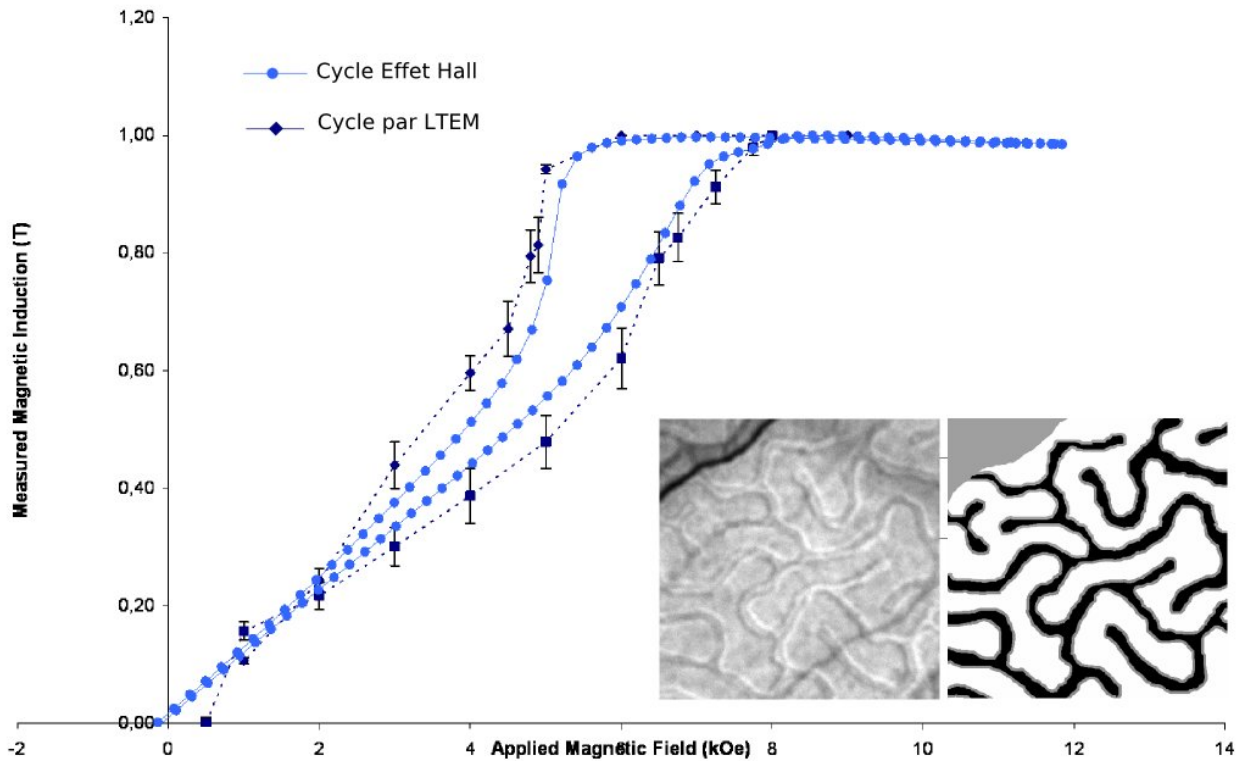
Une analyse plus approfondie de ces cycles d'aimantation permet d'obtenir deux types d'information.

### b Analyse Quantitative

Sachant que l'état de l'aimantation dans la couche correspond à une structure en domaines magnétiques Up et Down, nous pouvons, en analysant ces images, remonter à une estimation du cycle d'hystérésis (le cycle présenté sur la Fig. III.27 est un cycle mesuré au VSM). Nous avons réalisé une analyse numérique de cette série d'images. Les domaines magnétiques sont ainsi présentés en blanc et noir (Fig. III.28). Le gris est utilisé pour décrire les parois ainsi que les zones où les contrastes sont difficiles à discerner. Cette couleur grise correspond à notre barre d'erreur pour la mesure. Ensuite, l'aire occupée par les zones blanches et noires permet d'analyser l'occupation de la couche par les deux types de domaine. On accède ainsi, par le rapport des deux aires, à l'état d'aimantation. Ce demi-cycle d'hystérésis est présenté sur la Fig. III.28.



**FIG. III.27:** Demi-cycle d'hysteresis pour l'échantillon FePd/FePd<sub>2</sub>. Ce cycle a été acquis au VSM. Les images sont des clichés de Fresnel acquis pour différentes valeurs du champ. Taille des images : 5x5  $\mu\text{m}$ . Images obtenues avec le microscope JEOL 3010



**FIG. III.28:** Demi-cycle d’hysteresis, reconstitué à partir des clichés de Fresnel. La comparaison avec un cycle obtenu par effet Hall est proposée. Les 2 images montrent la procédure utilisée : à gauche le cliché de Fresnel, à droite la vue idéalisée (blanc : domaine Up; noir : domaine down; gris : parois et zones d’incertitude). *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

Le cycle que nous avons décrit uniquement à partir des clichés de Fresnel couvre une zone d’environ  $20 \mu\text{m}^2$ . Il est semblable au cycle obtenu par Effet Hall, sur un échantillon de plusieurs centaines de  $\text{mm}^2$ . On observe néanmoins que ce cycle est légèrement plus large.

Il faudrait, pour compléter cette étude, réaliser des mesures similaires sur des tailles de zones variables. Nous pourrions ainsi analyser à quel moment la mesure microscopique rejoint la mesure macroscopique.

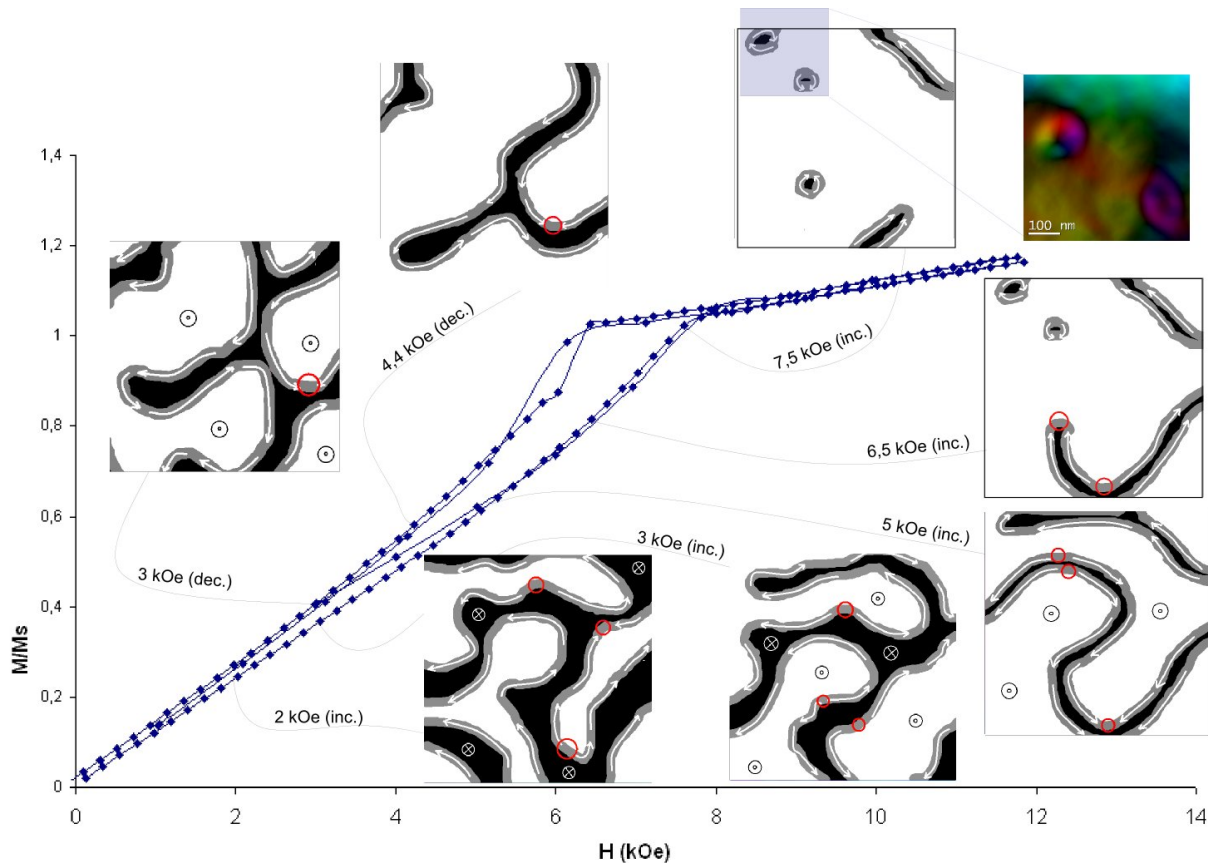
Nous avons néanmoins démontré qu’il est possible de décrire à partir de la microscopie de Lorentz, la totalité du comportement magnétique de l’échantillon. Ce cycle peut en effet être quantifié avec la valeur de l’aimantation à saturation déterminée dans la section précédente.

Cette caractérisation est avant tout locale. Ceci permet donc d’étudier ce cycle d’aimantation à l’échelle des parois. C’est l’objet de la section suivante.

### c Rôle des Lignes de Bloch Verticales

L’analyse des données fournies par la reconstruction focale a révélé l’existence dans les parois de l’échantillon de FePd de points de retournement de l’aimantation (Fig. III.16). Nous avons associé ces défauts à des lignes de Bloch verticales (par opposition aux lignes de Bloch horizontales qui couperaient les parois dans le plan de la couche). Ces objets ont été longuement étudiés dans les années 1980<sup>120,130</sup>, notamment dans les grenats, pour des applications dans l’enregistrement haute densité<sup>123</sup>. Ils sont constitués d’une “ligne” d’aimantation où tous les moments sont perpendiculaires à la paroi dans le plan de la couche (Fig. III.30). Ces lignes de Bloch verticales modifient les propriétés statiques et dynamiques des parois où elles apparaissent<sup>122</sup>.

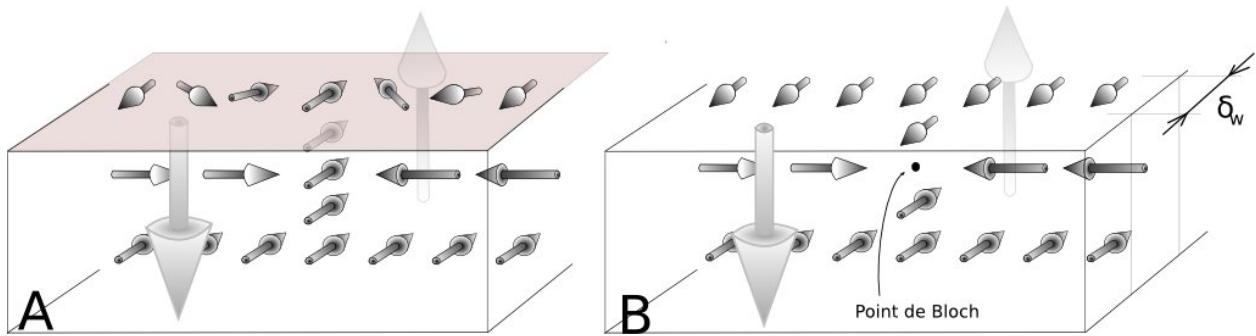
La Fig. III.29 présente le même cycle VSM que précédemment mais cette fois-ci avec des reconstructions focales par la TIE. Celles-ci sont idéalisées de la même manière que pour l'analyse quantitative mais avec l'indication du sens de l'induction déterminé par la TIE (le sens dans les domaines est lui déterminé par le comportement de ceux-ci sous l'action du champ). On peut ainsi analyser la direction de l'aimantation au niveau des parois de Bloch. Les lignes de Bloch sont alors aisément indentifiées par les points de retournement de l'aimantation. Celles-ci sont mises en évidence par des cercles rouges sur la Fig. III.29.



**FIG. III.29:** Demi-cycle d'aimantation mesuré par effet Hall. Pour différentes valeurs du champ magnétique des reconstructions par résolution de la TIE sont proposées. Les cercles sur les images indiquent la présence de VBL. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

Nous avons noté plusieurs phénomènes en observant ces VBL durant l'aimantation :

- Elles possèdent un degré de liberté le long de la paroi magnétique qui leur permet de s'y déplacer.
- Lors de la diminution de taille d'un domaine, elles ont tendance à se rapprocher l'une de l'autre, se faisant face de part et d'autre du domaine minoritaire.
- Elles peuvent disparaître durant leur déplacement (a priori en rencontrant une autre VBL par un processus d'annihilation<sup>130</sup>).
- Elles subsistent dans les derniers instants avant la saturation, dans les "bulles" de domaine minoritaire. On y trouve alors deux VBL, diamétralement opposées comme présenté sur le grandissement de la cartographie à 7,5 kOe sur la Fig. III.29.
- Elles ne sont pas nécessaires à la formation de ces "bulles" car des bulles sans lignes de Bloch ont été observées.



**FIG. III.30:** Comparaison des 2 types de ligne de Bloch verticales avec (droite) et sans (gauche) point de Bloch, décrites dans le texte. La zone en gris correspond à la couche présentée en simulation multi-échelles (Fig. III.31).

- Lors du retour de la saturation et de l'apparition brusque des domaines, elle existait déjà, et piège les parois magnétiques et ne se déplacent plus.

Pour valider l'existence de ces lignes de Bloch, nous avons simulé les deux types de bulles que nous avons observées (Fig. III.29, cartographie à 775 mT).

Ces simulations ont été réalisées par T. Jourdan avec une technique de simulation multi-échelles (cf. Chap I). Cette approche multi-échelles est essentielle pour simuler ces défauts. En effet, la description de ces lignes doit être réalisée avec une précision de l'ordre des longueurs caractéristiques du matériau (la longueur d'échange par exemple dans le FePd est de 2 nm). Dans le même temps, le plus petit système dans lequel nous pouvons les observer est la bulle d'aimantation, ayant un diamètre de l'ordre de 100 nm. Il est donc nécessaire de combiner une petite échelle pour la description du défaut, et une grande échelle pour décrire l'environnement sans dépasser les capacités des calculateurs utilisés.

Il existe deux configurations pour ces lignes de Bloch verticales. Ces configurations dépendent de l'existence ou non d'un point de Bloch au milieu de la paroi (Fig. III.30). On peut les décrire par une ligne, le long de l'épaisseur de la couche, dans laquelle les moments magnétiques sont en tout point perpendiculaires à l'aimantation dans les domaines et dans les parois. Ces deux différentes configurations sont :

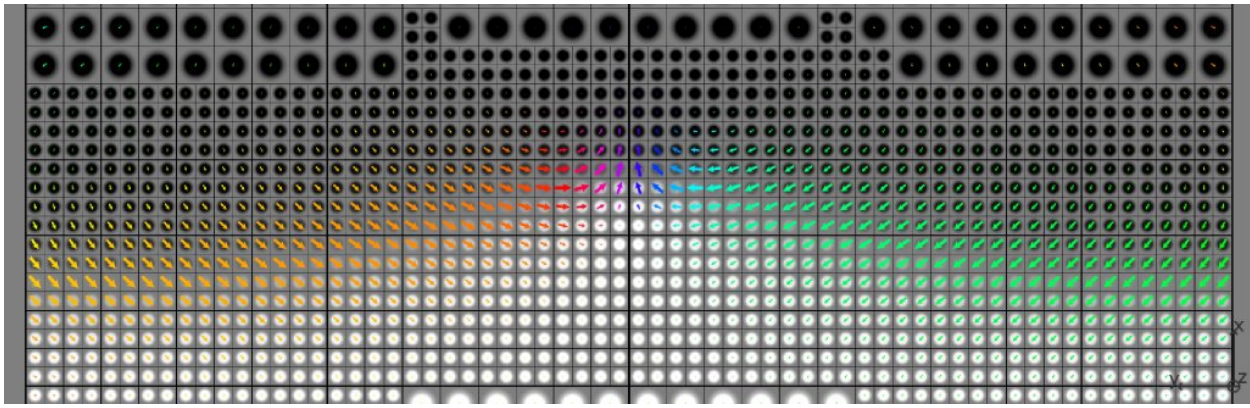
**Fig. III.30-A :** cette ligne est continue et tous les moments magnétiques de la ligne de Bloch sont parallèles : il n'y a pas de point de Bloch. Dans ce cas, l'aimantation dans un des deux domaines de fermeture de Néel présent de part et d'autre de la couche, subit une rotation à  $360^\circ$  pour s'aligner localement avec la ligne de Bloch verticale.

**Fig. III.30-B :** cette ligne présente un centre de symétrie (le point de Bloch), et les moments magnétiques de la ligne sont alors anti-parallèles de part et d'autre du point de Bloch. Dans ce cas, aucune incidence n'est observée sur les domaines de fermeture de Néel.

La première configuration est a priori présente pour des épaisseurs de couche inférieures à 15 nm<sup>131</sup> (théoriquement, pour des épaisseurs inférieures à 7,3 fois la longueur d'échange<sup>132</sup>).

Une conséquence remarquable de la présence de ce premier type de ligne est la courbure de la paroi de Bloch (Fig. III.31). Cette courbure intervient pour minimiser les charges magnétiques issues de la ligne de Bloch. Elle ne peut être validée expérimentalement dans les parois à la rémanence car même si la totalité des défauts observés (Fig. III.16) montrent des signes de courbure de la paroi, nous ne pouvons conclure sur l'origine de celle-ci, les domaines ne présentant jamais des parois rectilignes sur de longues distances. Aussi nous avons décidé de simuler un domaine en bulle dans lequel sont insérées soit deux lignes de Bloch (sans point de Bloch), soit aucune ligne de Bloch verticale. La configuration magnétique de ces deux bulles est présentée sur la Fig. III.32.

On observe que la configuration magnétique ne contenant aucune ligne de Bloch est parfaitement

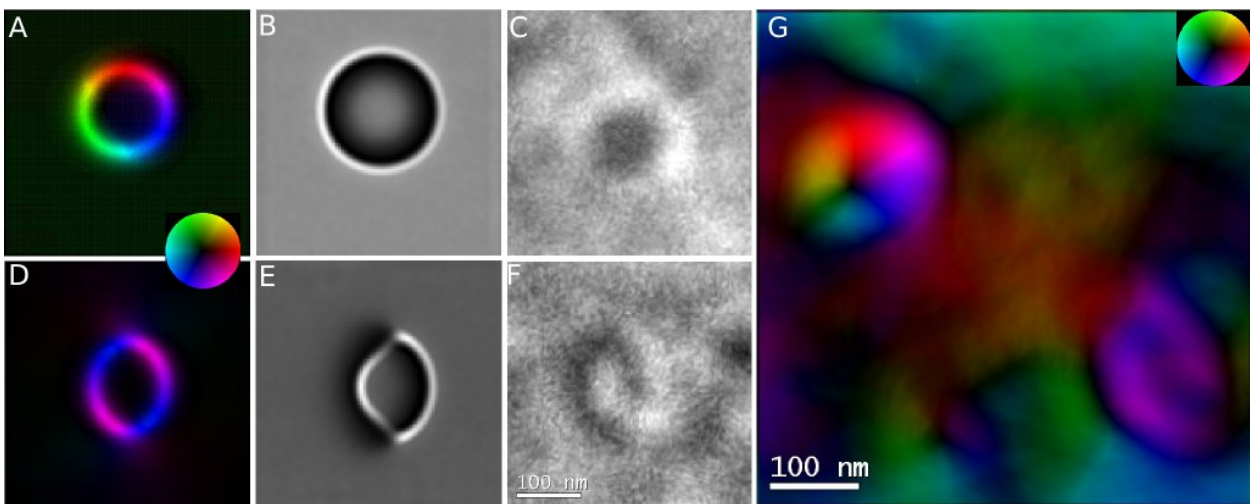


**FIG. III.31:** Résultat d'une simulation multi-échelles, sur la couche supérieure d'une paroi de Bloch possédant une ligne de Bloch verticale, sans point de Bloch (cf. Fig. III.30 - plan grisé). Le code couleur correspond à l'orientation des vecteurs dans l'image. Le noir et blanc pointe l'aimantation hors du plan. On distingue ainsi les domaines Up (en bas) et Down (en haut) séparés par la paroi. (Image tirée de la thèse de T. Jourdan<sup>131</sup>)

circulaire, que ce soit par la simulation ou par l'expérience (Fig. III.32-A,B et C). Par contre, la bulle d'aimantation présentant deux lignes de Bloch (diamétralement opposées sur la bulle) prend une forme allongée due à l'effet de ligne de Bloch (Fig. III.32-D,E et F).

Ces deux courbures sont opposées l'une à l'autre, ce qui implique que les rotations à  $360^\circ$  se situent du même côté de la couche. En effet, si ces deux rotations étaient situées de part et d'autre de la couche, on pourrait alors observer une structure magnétique avec deux courbures différentes, l'une pointant vers le centre, l'autre vers l'extérieur (en forme de coeur).

L'observation de ce type de ligne de Bloch (sans point de Bloch), pour une épaisseur beaucoup plus



**FIG. III.32:** Résultat de simulation multi-échelles, projetée dans un plan sur les deux types de bulles décrites dans le texte sont présentées. **A et C.** Simulation multi-échelles d'une bulle d'aimantation perpendiculaire sans et avec deux lignes de Bloch. **B et D.** Contrastes de Fresnel simulés ( $\Delta f = 20 \mu m$ ) à partir des simulations multi-échelles. **E et F.** Contrastes de Fresnel expérimentaux (défocalisation de l'ordre de la cinquantaine de  $\mu m$ ). **G.** Cartographie magnétique couleur, issue de la Fig. III.29. Images obtenues avec le microscope JEOL 3010

grande que prévue par la simulation, peut être due à notre système bi-couche. Les simulations ont montré un coût énergétique plus faible, pour la configuration avec point de Bloch si l'épaisseur est supérieure à 15 nm (37 nm dans notre cas). La présence de la couche douce augmente fortement la composante inférieure du domaine de fermeture de Néel (comme décrit dans les simulations micro-magnétiques). Ceci pourrait augmenter l'interaction d'échange entre les deux parties du domaine de fermeture. Ainsi, l'alignement parallèle des moments magnétiques pourrait alors être favorisé le long de la ligne de Bloch. Des simulations complémentaires sont actuellement en cours pour observer l'effet de cette couche douce sur la ligne de Bloch.

Une question reste ouverte sur l'interaction entre ces différentes lignes de Bloch durant les processus d'aimantation. Leur interaction mutuelle semble être à longue distance<sup>6</sup>, mais cette analyse reste encore à préciser par la simulation de l'interaction de ces défauts. Leur dynamique semble régir la structure en domaines, ainsi que la formation de ces bulles résiduelles d'aimantation. Les outils à notre disposition (simulation multi-échelles et microscopie de Lorentz) permettent de manière unique une étude très approfondie en volume de ces objets magnétiques.

#### Conclusion sur l'aimantation en LTEM

- Nous avons observé le cycle d'aimantation de cet alliage en termes de taille de domaines et de structure de parois magnétiques
- L'aimantation est un processus continu, produit par la variation progressive de la taille des domaines magnétiques tandis que la désaimantation est un processus discontinu, se traduisant par la formation brusque de domaines de grande taille qui s'agrandissent lors du retour à la rémanence.
- Le demi-cycle décrit en microscopie de Lorentz est quantitatif, permettant de reconstruire la forme du cycle d'hystérésis quantifié par les valeurs déterminées à partir des études statiques.
- Le processus fait intervenir des défauts magnétiques : les lignes de Bloch verticales. Celle-ci jouent un rôle majeur dans la forme des domaines lors de l'aimantation.
- Ces lignes de Bloch verticales ont été reproduites par la simulation multi-échelles.



## Conclusions et Perspectives sur le FePd

Nous avons pu effectuer la caractérisation magnétique d'un matériau, le FePd, en analysant sa configuration magnétique et son comportement sous champ.

Si je n'ai présenté ici que l'étude sur le Fer Palladium, pour plus de cohérence, nous avons aussi étudié d'autres matériaux à anisotropie perpendiculaire.

L'alliage Fer-Platine par exemple, possède des caractéristiques très similaires à celle du FePd. Son anisotropie uniaxiale est beaucoup plus importante ( $K_u = 10^7 \text{ J.m}^{-1}$ ) et il possède un champ coercitif beaucoup plus élevé (quelques centaines de mT). De plus, il présente un état à la rémanence totalement saturé. Son étude en microscopie de Lorentz est donc beaucoup plus complexe que celle du FePd. Les parois sont aussi plus fines (de l'ordre de 4 à 5 nm) du fait de l'augmentation de l'anisotropie. Elles présentent donc un signal magnétique beaucoup plus faible pour une analyse en vue plane. De plus, le cycle carré de cet alliage rend plus difficile l'observation des configurations en domaines.

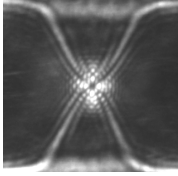
Nous avons aussi étudié des multicouches Cobalt-Platine pulvérisées. Ce type de croissance à l'avantage d'être plus proche de la réalité industrielle, mais présente les problèmes inhérents à la pulvérisation (mauvais état de surface par exemple). Par contre, le grand avantage pour la microscopie électronique est qu'il peut être déposé directement sur une membrane de nitrure ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) qui évite toute la phase de préparation de l'échantillon. Il se présente sous une forme polycristalline texturée. C'est ici la structure multi-couches qui lui confère une anisotropie magnétique perpendiculaire. Ce type d'échantillon a notamment été étudié pour réaliser des études de propagation de parois magnétiques dans des nanostructures lithographiées. Nos premières observations ont permis de caractériser l'évolution de la couche uniforme. La finalité de cette étude est l'observation, en microscopie électronique, de l'effet Spin-Torque (propagation de paroi par injection de courant polarisé)<sup>133</sup>.

De nombreuses études sont ainsi actuellement en cours ou en projet :

- La caractérisation par Holographie en coupe des couches magnétiques de CoPt et FePt (observation du piégeage sur micromacle dans le FePt, observation des relations magnétiques entre les différentes couches dans le CoPt)
- L'étude sous champ du processus d'aimantation des couches de FePt (piégeage sur des macles, sauts de Barkhausen)
- La propagation dans des systèmes lithographiés de parois magnétiques (sous champ puis sous l'action d'un courant électrique).



*« Gloire à Gallilée qu'on torture  
pendant que Copernique. »<sup>1</sup>*



## Chapitre Quatre

# Analyse descriptive de phénomènes magnétiques dans des Nanostructures

### Sommaire

Introduction . . . . .	106
IV.1 Notions de degré de liberté magnétique . . . . .	107
a Différents types d'objets magnétiques . . . . .	107
b Transition vortex-paroi . . . . .	111
Résumé des phénomènes . . . . .	113
IV.2 Description des objets de l'étude . . . . .	113
a Croissance et Structure . . . . .	113
b Etat de l'art des propriétés magnétiques des plots de Fer . .	115
c Plots de Cobalt . . . . .	119
Conclusion . . . . .	119
IV.3 Microscopie de Lorentz sur les Nanostructures . . . . .	119
a Méthodes utilisées . . . . .	120
b Etude du retournement d'un domaine de fermeture de Néel	124
c États Double-Landau bistables . . . . .	129
d Transition Vortex-Paroi . . . . .	132
e Vers le contrôle de la chiralité . . . . .	133
f Perspectives . . . . .	137
Conclusions . . . . .	137

## Introduction

Nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la microscopie de Lorentz permet la quantification magnétique à l'échelle nanométrique. Ceci dépend notamment de la géométrie et de la taille des échantillons étudiés. L'étude de couches minces se fait par exemple parfaitement en utilisant la résolution de l'équation de transport d'intensité. Les dimensions des domaines magnétiques de couches minces de Fer-Palladium sont aussi parfaitement adaptées à l'holographie électronique. En revanche l'étude de nanostructures trop grandes pour l'holographie<sup>134</sup>, et présentant trop de variations topographiques pour appliquer quantitativement la reconstruction via la TIE, peut plus simplement être menée sur les contrastes de Fresnel. Il faut dans ce cas associer l'observation à la simulation micromagnétique. Et c'est dans ce chapitre la liberté d'application d'un champ magnétique pour une étude en dynamique qui est mise en avant. Nous traitons ici de la problématique de contrôle de la configuration magnétique dans une nanostructure tridimensionnelle.

Le système de stockage de l'information repose aujourd'hui sur la direction de l'aimantation d'un domaine magnétique. Dans un disque dur, une mémoire volatile ou même dans une MRAM, la donnée correspond classiquement à un sens de l'aimantation dans un espace limité : le bit de donnée. On définit alors le degré de liberté de l'objet de stockage comme le sens que l'aimantation peut prendre dans le domaine. On associe donc un degré de liberté à celui-ci. La direction dans le plan doit être fixe pour être interprétable par le système de lecture. L'aimantation perpendiculaire présentée au chapitre précédent ne propose par exemple qu'un seul degré de liberté (Up ou Down), comme dans un disque dur classique. Une possibilité pour augmenter la capacité est d'envisager le stockage sur des systèmes présentant un nombre de degrés de liberté encore plus grand. L'objet contenant la donnée ne serait alors plus limité à seulement deux états, mais par exemple trois<sup>135</sup> voire cinq<sup>136</sup>. Dans ce but, le contrôle d'objets purement magnétiques de basses dimensions (que sont les parois magnétiques et les vortex) indépendamment des autres propriétés magnétiques du média, est un axe de recherche de plus en plus exploré<sup>137,138</sup>. Les systèmes à fermeture de flux ont ainsi été longuement étudiés car ils contiennent deux informations binaires. Celles-ci sont contenues dans la polarité et la chiralité du vortex présent pour minimiser l'énergie dipolaire du système<sup>139</sup>. Des travaux ont récemment montré, qu'il était possible de contrôler cette polarité par l'application d'un champ magnétique<sup>140 141</sup>. D'autres ont mis en évidence la dépendance de la chiralité avec la symétrie des nanostructures étudiées<sup>142</sup>. Il est donc possible, dans un vortex magnétique d'avoir accès à quatre états distincts (soit deux données binaires).

Notre système a pour but de caractériser des structures plus complexes que des vortex magnétiques : les parois de domaines. Ces parois, lorsqu'elles sont confinées dans des structures à fermeture de flux présentent un degré de liberté supplémentaire par rapport à un état vortex<sup>143</sup> : leur domaine de fermeture de Néel (déjà abordé au chapitre précédent). Nous avons articulé cette étude autour de plots épitaxiés et auto-assemblés. Les premiers objets que nous avons observés, les plots de Fer auto-assemblés<sup>144</sup>, est étudié depuis de nombreuses années. Ses propriétés magnétiques et structurales ont été analysées dans de nombreuses thèses<sup>145,146</sup> et articles<sup>143,147</sup> à l'Institut Néel de Grenoble d'où sont issus les échantillons. Notre deuxième système sera un nouvel objet, dans la lignée du précédent, mais jamais encore étudié : des plots de Cobalt auto-assemblés.

L'intérêt de ces structures cristallines est de pouvoir réaliser une approche fondamentale des phénomènes en s'affranchissant au maximum des défauts structuraux. Les observations peuvent alors être comparées de manière fiable aux simulations micromagnétiques. Dans un domaine plus applicatif, l'opportunité de stocker trois bits de donnée sur une structure de l'ordre du micromètre permettrait de revoir à la hausse toutes les prévisions de capacité de stockage.

Cette étude présente donc les résultats d'une étroite collaboration entre notre laboratoire (SP2M) et le laboratoire MNM (Micro et Nanomagnétisme) de l'Institut Néel de Grenoble, et sont notamment

étayés d'un autre point de vue dans la thèse de F. Cheynis<sup>145</sup>.

## IV.1 Notions de degré de liberté magnétique

Une notion importante a été abordée dans cette introduction : le nombre  $n$  de degrés de liberté magnétique d'un système. On entend par là qu'un système peut se présenter dans  $2^n$  états distincts, énergétiquement équivalents. Pour montrer que ces degrés de liberté présentent un intérêt pratique il faut pouvoir les contrôler. Une action extérieure, comme l'application d'un champ magnétique, doit pouvoir ainsi déterminer l'un ou l'autre de ces états, et ce de manière reproductible<sup>148</sup>.

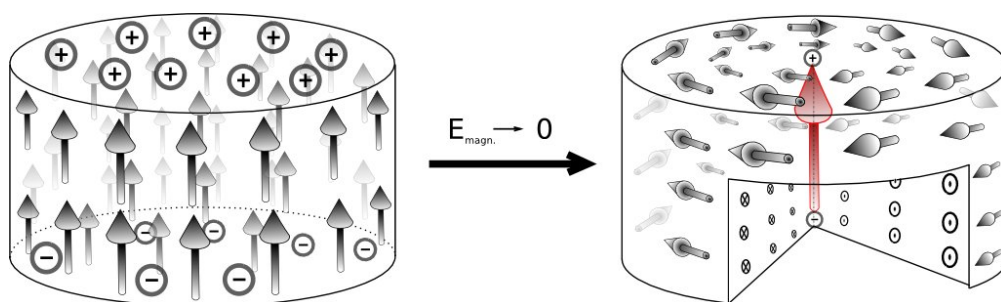
Le degré de liberté d'un domaine, dans l'utilisation qui en est faite aujourd'hui, est le sens de l'aimantation de celui-ci relativement à une direction principale. Nous décrivons ici les degrés de liberté d'objets magnétiques de plus basse dimensionnalité qu'un domaine magnétique : les vortex et les parois. Cette présentation a pour but d'introduire les phénomènes qui seront caractérisés ensuite par microscopie de Lorentz dans la dernière section de ce chapitre. La simulation micromagnétique nous permettra tout d'abord d'illustrer une description phénoménologique des processus de contrôle. Les matériaux que nous avons étudiés seront eux détaillés dans la section suivante.

### a Différents types d'objets magnétiques

Nous n'allons pas entrer dans une description précise des objets magnétiques que l'on peut rencontrer dans les couches minces, celle-ci est disponible ailleurs<sup>6</sup>. Notre but ici est de donner une vision rapide de leurs degrés de liberté. Leur dimensionnalité nous permet de les classer en trois grandes catégories :

- Les *domaines magnétiques* qui ont ainsi un caractère bidimensionnel (2D), défini par le plan de la couche magnétique. Nous ne les aborderons pas ici.
- Les *parois de domaine* qui ont un caractère 1D.
- Les objets 0D qui sont classiquement présentés à l'aide des *vortex*.

Il est utile de préciser ici que ces dimensionnalités ne sont valable qu'à une grande échelle. La description micromagnétique du vortex et de la paroi magnétique que nous allons utiliser est en 3 dimensions. Néanmoins cette approche simple (de 0 à 2 dimensions, en négligeant celle de l'épaisseur) permet d'avoir une vue d'ensemble sur les liens entre ces trois objets que nous aborderont au cours de cette partie.



**FIG. IV.1:** Configuration magnétique énergétiquement instable et état vortex dans un cylindre magnétique. Dans le premier cas, les charges magnétiques s'accumulent sur les surfaces du cylindre. La configuration vortex ne présente presque aucune charge magnétique. Le coeur de vortex est indiqué en rouge, la chiralité avec les autres vecteurs.

## i Vortex

L'état de vortex magnétique a été tout d'abord prédit par la simulation<sup>139</sup>. Le vortex apparaît comme une singularité magnétique, introduite pour minimiser l'énergie dipolaire d'un objet cylindrique de longueur finie (le plot de la Fig. IV.1). L'aimantation dans le cylindre adopte ainsi une configuration visant à fermer le flux magnétique sans accumuler de charges magnétiques. Ceci est réalisé avec une aimantation parallèle aux surfaces en tout point. Celle-ci tourne donc dans le volume du cylindre. Au milieu de ce cylindre apparaît alors un volume d'aimantation perpendiculaire au plan de rotation : c'est le *coeur de vortex*. Ce coeur a été mis en évidence par des expériences de MFM<sup>149</sup>.

Le vortex est alors défini par deux degrés de liberté. Le premier est le sens dans lequel l'aimantation tourne dans le cylindre qui peut être horaire ou anti-horaire. On parle de *chiralité*. Le deuxième degré de liberté est le sens de l'aimantation du coeur de vortex qui peut pointer vers le haut ou vers le bas. On parle ici de *polarisation* du coeur de vortex.

## ii Contrôle d'un vortex

Pour envisager la manipulation d'un tel objet magnétique, il faut déterminer une action extérieure permettant de sélectionner les quatre états différents de manière fiable. Il a ainsi été prédit que la polarisation du vortex pouvait être modifiée sans influencer sur la chiralité de ce dernier en appliquant un champ magnétique le long de l'axe du coeur de vortex<sup>150</sup>. Des expériences ont effectivement montré que cette polarisation pouvait être sélectionnée en appliquant un champ magnétique perpendiculaire suffisamment grand<sup>141</sup> ou par l'application de champs planaires pulsés<sup>138</sup> ou oscillants<sup>151</sup>. Dans un autre domaine on cherche maintenant à piloter cette polarisation à l'aide d'un courant polarisé<sup>152</sup>.

Les recherches sur le contrôle de la chiralité sont plus récentes. Certaines études se consacrent ainsi au contrôle de cette chiralité dans des anneaux plutôt que des disques<sup>142</sup>. Elles se basent avant tout sur une anisotropie de forme, permettant de privilégier l'un ou l'autre des états quand un champ magnétique est appliqué dans le plan du disque<sup>140</sup>.

Dans notre description nous avons associé le vortex magnétique à un objet 0D. Il est évident ici que ce vortex ne peut se réduire à une dimension 0. Si le caractère 0D du coeur de vortex est suffisant pour décrire sa manipulation, c'est bien sa description en 2D qui est nécessaire pour aborder la chiralité. Nous verrons même plus loin que nous avons aussi besoin d'une description 3D (déjà présentée en Fig. I.9 du Chap. I) pour comprendre certains phénomènes.

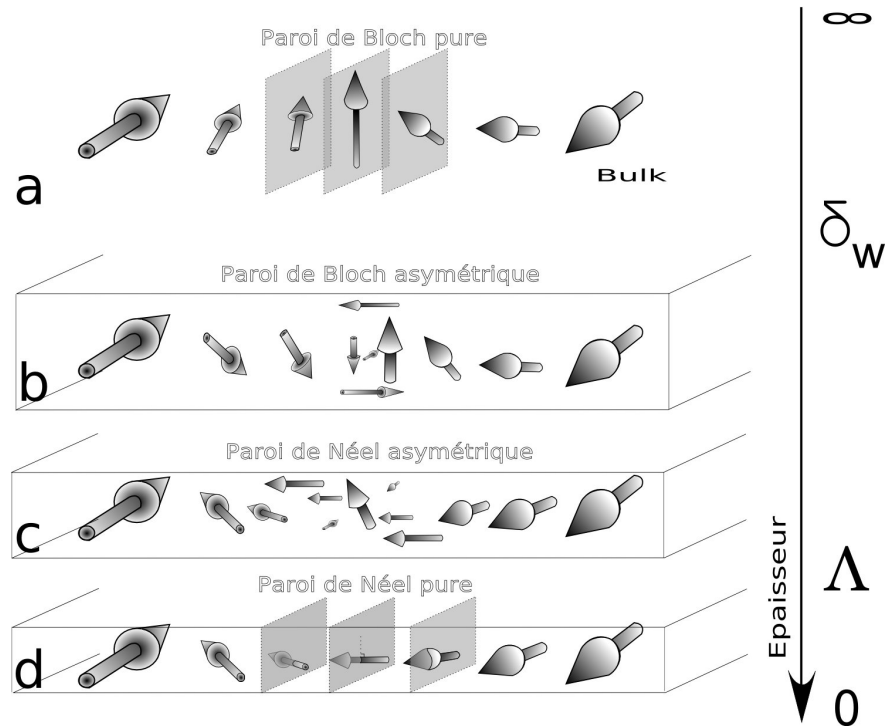
Nous allons voir dans ce chapitre qu'il est possible d'augmenter le nombre de degrés de liberté en changeant de système : les parois de domaine.

## iii Parois

Deux noms sont associés à la notion de paroi magnétique : Felix Bloch et Louis Néel. Le premier a réalisé les premières études portant sur la structure des parois et a donné son nom aux parois de Bloch, où l'aimantation tourne dans le plan de la paroi (Fig. IV.2-a). Dans les parois de Néel (Louis Néel a le premier abordé les parois magnétiques dans les couches minces) l'aimantation tourne dans le plan perpendiculaire à la paroi (Fig. IV.2-d).

La paroi de Bloch se retrouve dans des matériaux massifs (épaisseur infinie) présentant une anisotropie uniaxiale, tandis que la paroi de Néel apparaît dans les films très minces à aimantation planaire. Dans les faits, les parois de Bloch réelles sont plus complexes que le schéma présenté en Fig. IV.2-a. Quand l'épaisseur du film devient plus faible, du même ordre que la longueur associée à la paroi de Bloch ( $\delta_w = \pi \sqrt{\frac{A}{K_u}}$ ), elle tend à disparaître pour minimiser l'énergie qui y est associée. La paroi de Néel apparaît quant à elle pour des épaisseurs de l'ordre de la longueur d'échange du

**FIG. IV.2:** Différents types de parois magnétique pour une anisotropie uniaxiale. Le paramètre variant entre les configuration est l'épaisseur de la couche (du Bulk en haut, à une couche très mince en bas). Schéma inspiré des descriptions de Hübert et Schäffer<sup>6</sup>.



matériau ( $\Lambda = \pi\sqrt{2A/(\mu_0 M_S^2)}$ ). La paroi de Néel est aussi très instable en terme d'énergie. Elle est généralement remplacée par des parois dites "cross-tie", où la structure magnétique de la paroi varie (entre zones de Néel et zones de Bloch) le long de celle-ci<sup>153</sup>.

Pour illustrer la complexité des parois magnétiques on peut revenir au cas des parois que nous avons étudiées dans le chapitre III. Celles-ci étaient des parois de Bloch, entourées d'un domaine de fermeture de Néel. Sur les surfaces de la couche on observait des parois "purement" Néel (opposées l'une à l'autre de chaque côté de la couche) tandis qu'au coeur de la couche, on observait une paroi de Bloch. Ces domaines de fermeture sont issus de la minimisation de l'énergie dipolaire, tendant à aligner l'aimantation le long des surfaces<sup>154</sup>. Mais si cette configuration entraîne une complexification de la structure de la paroi, on peut aussi voir qu'elle apporte ici un degré de liberté supplémentaire : la chiralité de ce domaine de fermeture<sup>143</sup>. Notre étude se situe à ce niveau, sur la possibilité de contrôler la chiralité de ce domaine de fermeture de Néel par l'application d'un champ magnétique transverse à la paroi.

#### iv Contrôle d'une paroi

Nous avons montré dans la section précédente qu'il était possible de contrôler les deux degrés de liberté d'un vortex par l'application d'un champ magnétique. Nous venons de plus de mettre en évidence un autre degré de liberté dans les parois de domaines. Le but de cette section est de présenter l'action d'un champ magnétique sur cet objet. L'idée est similaire à celle utilisée pour le coeur de vortex : l'application d'un champ parallèlement à l'aimantation de l'objet peut conduire au changement de sa chiralité.

La Fig. IV.2 présente les différents types de parois attendues dans une couche mince. A partir des descriptions générales de parois de Bloch et de Néel, on peut définir deux autres types de parois : les parois de Bloch asymétriques et les parois de Néel asymétriques<sup>6</sup>.

Ces descriptions peuvent s'appliquer aux nanostructures dès lors que les dimensions de ces dernières sont plus grandes que les longueurs magnétiques considérées (*i.e.* longueur d'échange et largeur de parois petites devant les dimensions de la nanostructure). Nous allons donc présenter ici les résultats



précédents obtenus dans des couches minces avant d'appliquer les mêmes concepts à des objets 3D.

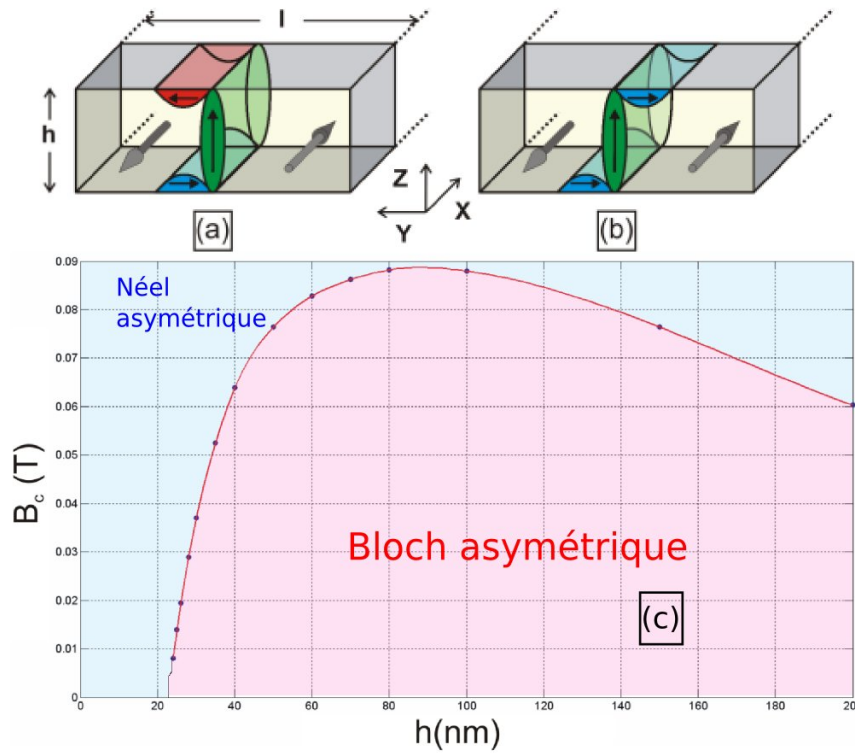
### Transition Néel-Bloch asymétrique

Un diagramme de phase a été établi pour présenter la coexistence de ces différents types de parois (symétriques et asymétriques) dans les films minces<sup>155</sup>. Des calculs ont ainsi mis en évidence qu'il était possible de sélectionner l'une ou l'autre des configurations asymétriques par l'application d'un champ transverse<sup>6</sup>. L'intérêt d'une telle transition est le contrôle du renversement du domaine de fermeture de Néel de la paroi de Bloch. En effet, si on observe les deux configurations (Fig. IV.2 b et c) on voit que la différence majeure vient de la partie inférieure du domaine de fermeture de Néel. A cet endroit précis, l'aimantation diffère d'un angle de 180° entre les deux configurations. Le passage de l'une à l'autre des configurations peut donc être vu comme le retournement de ce domaine de fermeture de Néel.

Pourtant, les calculs réalisés sont limités aux films minces de permalloy (NiFe). Il a donc été proposé de refaire cette étude, pour déterminer le champ de retournement de l'une à l'autre de ces configurations dans des films de Fer. Ces résultats seront, dans la suite de ce chapitre, étendus aux nanostructures de Fer auto-assemblées<sup>145</sup>.

### Étude par la simulation

Cette étude a été menée par J.C Toussaint, avec le code GL-FFT en 2 dimensions (cf. Chap I) pour tester la stabilité des deux types de paroi<sup>145</sup> : Néel et Bloch asymétrique. Elle est présentée en Fig. IV.3. Le système est à deux dimensions et on considère une barre de Fer de longueur infinie, où deux domaines d'aimantation opposée sont séparés par une paroi magnétique. L'étude porte sur la stabilité de la paroi magnétique en fonction de l'épaisseur et d'un champ appliqué.



**FIG. IV.3:** **A.** Configuration en paroi de Bloch asymétrique. **B.** Configuration en paroi de Néel asymétrique. **C.** Champ critique d'isoénergie entre les deux configurations de paroi, pour une variation de l'épaisseur de la couche. Images issues de la thèse de F. Cheynis<sup>145</sup>

Le premier résultat, obtenu de manière statique, montre que pour des épaisseurs supérieures à 25 nm, la configuration en Bloch asymétrique est plus stable que la configuration en Néel asymétrique (on étudie ici des variations d'épaisseur mais le rapport d'aspect, défini par le rapport  $hauteur/largeur$  est gardé constant à 0,2).

La modification de l'épaisseur est ensuite remplacée par un champ magnétique appliqué transversalement au domaine de fermeture de Néel. Ce champ a pour but de favoriser l'alignement des domaines de fermeture de Néel de part et d'autre de la couche, et ainsi de basculer vers une configuration en Néel asymétrique (Fig. IV.3-A et B).

La simulation (Fig. IV.3-C) montre qu'au-delà d'un champ critique (pour des hauteurs supérieures à 25 nm), la stabilité énergétique bascule à nouveau vers le Néel asymétrique. Ce champ critique évolue a priori peu avec l'épaisseur dans la gamme que nous considérerons dans nos systèmes par la suite (autour de 100 nm). Le phénomène est donc décrit comme le retournement du domaine de fermeture de Néel.

Un premier pas vers le contrôle du troisième degré de liberté d'une paroi magnétique peut donc être associé au passage de l'une à l'autre des parois décrites dans le paragraphe précédent. Ce résultat démontre déjà la possibilité de contrôler une composante d'une paroi magnétique par l'application d'un champ magnétique : son domaine de fermeture de Néel. Nous verrons plus loin comment ce raisonnement peut être appliqué aux nanostructures.

## b Transition vortex-paroi

Dans une démarche plus prospective on peut envisager à une autre échelle le contrôle de ces parois. La transition entre un état vortex et un état paroi peut par exemple donner accès à un nombre d'états stables bien supérieur.

Une autre étude par simulation a ainsi été mise en oeuvre par Jean-Christophe Toussaint et Olivier Fruchart. La topologie d'un vortex et d'une paroi de Bloch, confinée dans une nanostructure, sont très proches<sup>139,156</sup>. La paroi de Bloch dans une nanostructure (voir aussi Fig. IV.8 dans la section suivante) peut être vue comme un vortex que l'on aurait étiré. Celui-ci est défini par un volume d'aimantation perpendiculaire (le coeur de vortex). Ce petit volume est terminé de chaque côté de la couche par un vortex de surface (Fig. IV.4-A3). Si on décale l'un de ces vortex (le vortex de surface supérieur dans notre cas) le long de la surface de la couche, l'autre restant fixe on obtient alors un coeur de vortex étiré dans la longueur, qui forme une paroi de Bloch (Fig. IV.4-A2). Comme le vortex, cette paroi est constituée d'un volume d'aimantation perpendiculaire, terminé à chaque extrémité de la paroi par un vortex de surface (Fig. IV.4-A1).

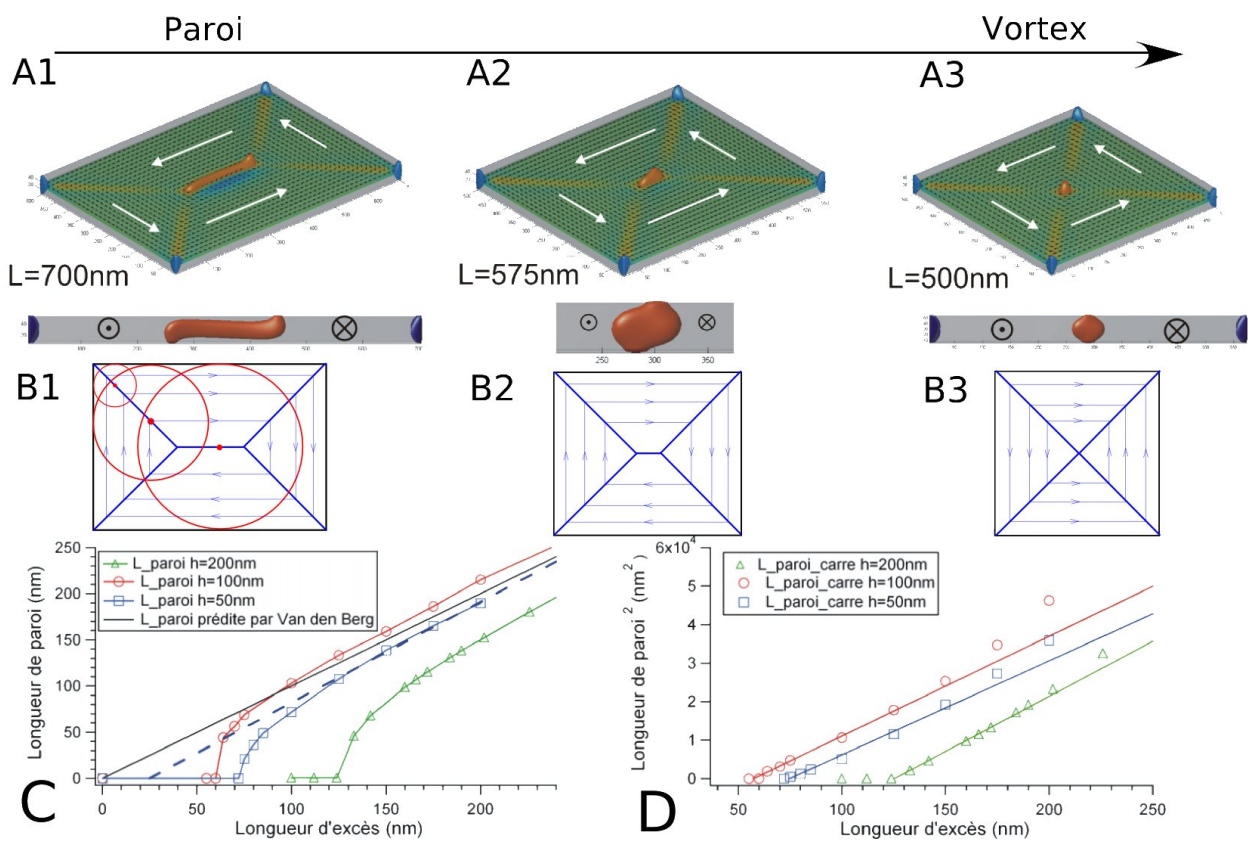
Cette identité topologique pose naturellement la question d'une éventuelle transition entre ces deux états.

Pour obtenir cette transition, on modifie la longueur du plot. La Fig. IV.4 montre les résultats de cette étude.

Un plot de largeur 500 nm et de longueur 700 nm est simulé en trois dimensions avec GL-FFT pour obtenir sa configuration micro-magnétique. La longueur du plot est ensuite progressivement réduite (Fig. IV.4-A), une nouvelle simulation étant effectuée pour différentes longueurs. Pratiquement, et pour éviter les problèmes de bistabilité, les simulations ont été effectuées dans les deux sens (élongation et rétrécissement) pour obtenir à coup sûr l'état fondamental. Ce plot est caractérisé par une structure à fermeture de flux. En son centre, on trouve une paroi de Bloch, comme décrite au paragraphe précédent.

Quand la longueur du plot diminue, la paroi de Bloch voit également sa longueur diminuer de façon linéaire. C'est lorsqu'on arrive au voisinage d'une structure carrée (définie ici par une longueur

d'excès, longueur moins largeur, nulle) que l'on observe un changement de régime. En effet, on peut observer sur la Fig. IV.4-C, qu'à partir d'un certain point, la longueur de la paroi chute rapidement pour arriver dans un état vortex. Cette transition est du second d'ordre (cf. Fig. IV.4-D). Ce que l'on a nommé longueur d'excès peut être compris en rapport avec les prédictions de Van Den Berg<sup>157,158,159</sup>. La construction de Van den Berg repose sur une approche géométrique permettant, à partir de la forme du plot, de remonter à la distribution du flux magnétique et à la position des parois dans une nanostructure (Fig. IV.4-B). Elle consiste à déterminer le lieu des cercles inscrits (étant tangents à au moins deux bords) dans la nanostructure. Ce lieu définit alors celui des parois magnétiques. Cette construction prédit ainsi une paroi pour une forme de plot rectangulaire, et un vortex pour une forme carrée. Aucune transition du second ordre n'est observée avec ce type de construction (cf. Fig. IV.4-C, courbe noire) puisqu'en tout point, la longueur de paroi de cette prédiction est identique à la longueur d'excès.



**FIG. IV.4:** **A 1-3.** Évolution de la configuration de la paroi de Bloch d'un plot de 500 nm de large en fonction de sa longueur. La distribution présentée est seuillée ( $0,5.M_s$ ) le long de la verticale du plot. Les profils sous les figures présentent une vue en coupe du plot, le long de la paroi de Bloch. **B 1-3.** Constructions de Van Den Berg pour la forme considérée. **C.** Évolution de la longueur de la paroi en fonction de la longueur d'excès ( $Long. - larg.$ ), présentée pour plusieurs hauteurs de plot, ainsi que suivant la construction de Van Den Berg. **D.** Mêmes données que le graphe précédent (B) mais présentées en fonction du carré de la longueur de paroi. *Les simulations micromagnétiques et les graphiques sont issus de la thèse de F. Cheynis<sup>145</sup>*

## Résumé des phénomènes

- Des expériences et des simulations montrent qu'il est possible de contrôler des degrés de liberté internes aux parois et vortex magnétiques
- Un coeur de vortex peut être renversé par l'application d'un champ perpendiculaire
- La chiralité du vortex dépend de la géométrie de la structure qui le contient et de son histoire magnétique
- Il est possible de sélectionner la nature d'une paroi magnétique (Bloch ou Néel asymétrique) par l'application d'un champ magnétique transverse à celle-ci
- Une paroi magnétique peut passer dans un état vortex par modification de la structure externe du système; cette transition est du 2<sup>nd</sup> ordre

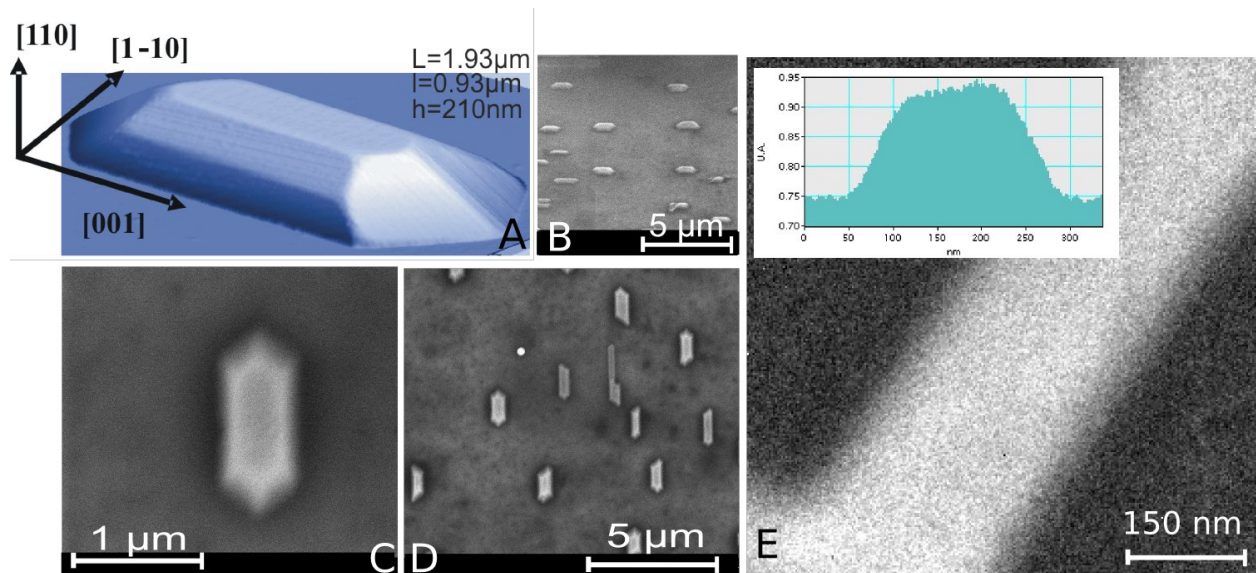
## IV.2 Description des objets de l'étude

Nous décrivons ici les deux systèmes étudiés pour mettre en évidence les phénomènes énoncés plus haut. Le premier est connu, tant au niveau structural que magnétique. Le second est un système plus exotique, dont la croissance a été motivée par l'obtention d'une symétrie plus élevée dans ces nanostructures.

### a Croissance et Structure

#### i Croissance de plots de Fer auto-organisés

Ces plots sont réalisés par un Dépôt à Laser Pulsé (DLP) sous ultra-vide à l'Institut Néel par F. Cheynis et O. Fruchart. Le substrat utilisé est le saphir (11 $\bar{2}$ 0), qui permet d'obtenir une croissance du Fer suivant le plan (110). Le dépôt de fer est réalisé à chaud (325-575 °C), sur une couche tampon de 8 nm de Tungstène préalablement recuite (800 °C). Une couche de couverture (Au) est



**FIG. IV.5:** **A.** Image AFM d'un plot de Fer. Les dimensions du plot sont données. *Images issues de la thèse de F. Cheynis<sup>145</sup>* **B,C,D.** Vue par Microscopie Electronique à Balayage des plots. L'image B est prise avec un tilt de l'échantillon à 52° qui fait ressortir le relief. Le contraste sur le bord des plots des images C et D, est dû aux facettes. **E.** Image EFTEM, filtrée au seuil du Fer ( $L_{23}$  à 708 eV). Le contraste rend compte de la distribution du Fer et renseigne sur la topographie du plot (cf. insert).



**FIG. IV.6:** **A** Relation épitaxiale entre la couche tampon de Tungstène et le Fer. **B** Champ clair et champ sombre (en insert) du même plot.

ensuite déposée pour protéger de l'oxydation. Tous les détails sur la croissance de ces plots peuvent être trouvés dans la référence<sup>160</sup>.

La croissance se déroule suivant le mode Stranski-Krastanov : une combinaison de croissance couche par couche et par îlots. Le résultat de ce type de croissance est l'obtention de plots, auto-organisés et parfaitement facettés. Ces facettes suivent des directions cristallographiques bien définies.

Ces plots de Fer auto-organisés présentent un allongement suivant la direction [001]. Les dimensions caractéristiques de ces plots peuvent être établies comme suit : une longueur de l'ordre du micromètre, une largeur de quelques centaines de nanomètres, et une épaisseur de l'ordre de la centaine de nanomètres. Les images AFM (Fig. IV.5-A) couplées à des analyses RHEED (Reflexion High-Energy Electrons Diffraction) permettent d'indexer les facettes. La caractérisation de celles-ci permet de définir le modèle de plot utilisé pour les simulations micromagnétiques que nous verrons ensuite.

Une étude structurale en microscopie électronique est présentée en Fig. IV.6. La croissance est bien réalisée selon le plan (110) du Fer et du Tungstène. Le désaccord de maille attendu entre le Tungstène (structure Cubique Centré -  $a = 3,16 \text{ \AA}$ ) et le Fer (structure Cubique Centré -  $a = 2,87 \text{ \AA}$ ) est de 4,8%. La littérature<sup>160</sup> montre que la relaxation des contraintes induites par ce désaccord est très vite réalisée (après seulement trois plans atomiques). Aussi, aucun défaut ou dislocation n'a pu être observé dans la zone d'observation.

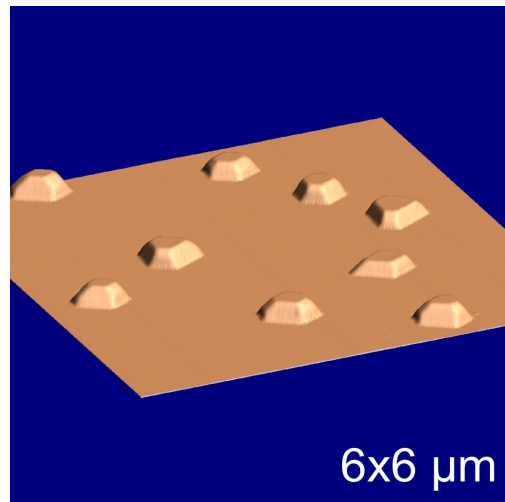
Une analyse en champ clair/champ sombre (Fig. IV.6-B) montre que de nombreuses déformations sont présentes à la base des plots.

## ii Croissance de plots de Co auto-organisés

Ce type de croissance auto-organisée, très similaire à celle du Fer, n'a encore jamais été étudiée. Son intérêt est venu de la nécessité, pour observer le phénomène de transition Vortex-Paroi d'obtenir des plots ayant un maximum d'axes de symétrie (seulement 2 pour les plots de Fer). Ces plots de Cobalt sont supposés présenter une anisotropie de forme beaucoup moins marquée que pour le Fer. Le dépôt a lui aussi été effectué par DLP.

Les premières observations après dépôt sont très encourageantes (Fig. IV.7) puisque l'on obtient des plots d'une hauteur d'environ 100 nm présentant une géométrie beaucoup moins allongée que celle des plots de Fer. Ils sont également facettés, mais ici le double facettage (deux orientations différentes sur la même facette) est parfaitement symétrique. L'étude précise des directions cristallographiques de ces facettes a récemment montré que leur structure n'était pas la structure hexagonale

**FIG. IV.7:** Image AFM de l'échantillon de Plots de Co. Cliché réalisé par O. Fruchart



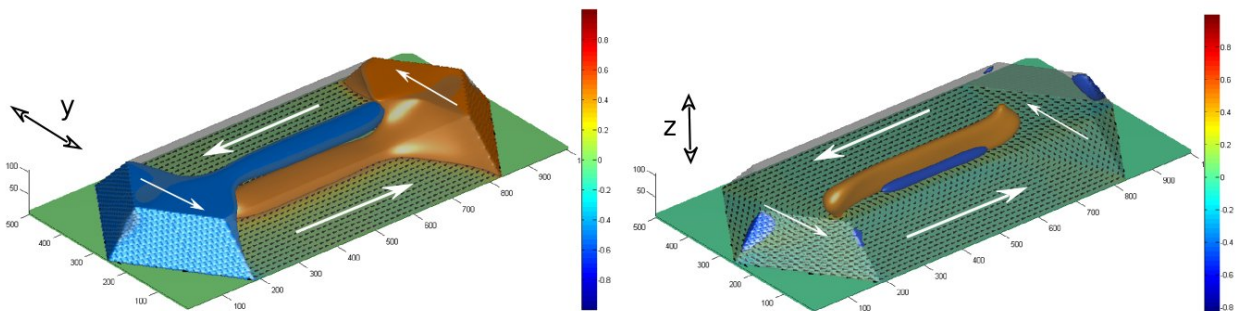
compacte attendue normalement pour de si grandes structures. En effet, il s'avère que la structure est cubique à face centrées.

## b Etat de l'art des propriétés magnétiques des plots de Fer

### i Simulations Micromagnétiques

Nous présentons ici des simulations micromagnétiques en 3 dimensions (abordées dans le Chap. I) sur les plots de Fer.

La méthodologie du code développé par J.C. Toussaint est détaillée par ailleurs (cf. Chapitre I et <sup>145,161</sup>) aussi nous nous attacherons ici aux résultats des simulations qu'il a effectuées pour ces systèmes. Les résultats présentés ici et dans les sections suivantes ont été réalisés pour des plots de dimensions  $1000 \times 500 \times 100$  nm avec des cellules de  $3.9 \times 3.9 \times 3.1$  nm. La forme générale du plot est déduite des observations structurales, notamment pour l'angle des facettes.



**FIG. IV.8:** Simulation Micromagnétique à 3 dimensions effectuée avec GL-FFT. Les deux images correspondent à une distribution seuillée de l'aimantation (supérieure à  $0.5 \cdot M_s$ ), dans les directions  $y$  et  $z$  décrites sur le schéma et suivant le code couleur décrit sur les figures. Simulations effectuées par J.C. Toussaint

La structure magnétique présentée Fig. IV.8 est appelée structure *Landau* et possède les caractéristiques suivantes :

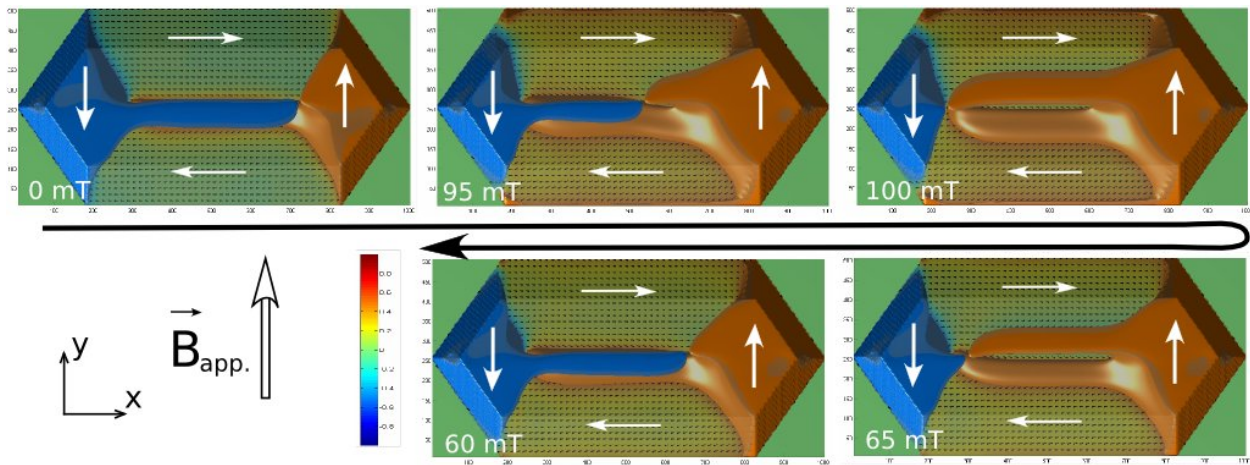
- Une structure à fermeture de flux : l'aimantation suit les bords du plot en tournant autour de celui-ci.

- Une paroi de Bloch centrale (Fig. IV.8-z), entourée par un domaine de fermeture de flux de Néel (Fig. IV.8-y).
- Cette paroi est terminée à ses 2 extrémités par un vortex de surface, d'un côté et de l'autre du plot (Fig. IV.8-z). Celle-ci s'explique par le caractère fini de la paroi de Bloch<sup>6</sup>.

On observe sur la composante verticale seuillée de l'aimantation la présence d'un petit volume où l'aimantation pointe vers le bas (en bleu) : nous sommes bien en présence d'une paroi de Bloch asymétrique.

## ii Renversement du domaine de fermeture de Néel

L'association de la simulation 2D présentée en début de chapitre sur la transition Néel-Bloch asymétrique, et cette simulation 3D de nos nanostructures est présentée en Fig. IV.9. Il s'agit d'observer le retournement du domaine de fermeture de Néel par l'application d'un champ magnétique transverse au plot.



**FIG. IV.9:** Évolution de la configuration magnétique du plot en fonction du champ transverse appliqué. La distribution présentée est une distribution seuillée selon la direction  $y$  (verticale des images). Le code couleur et la direction du champ sont explicités à gauche de la figure. *Simulations effectuées par J.C. Toussaint*

On observe la même transition entre paroi de Bloch et Néel asymétrique que pour le cas d'une structure de longueur infinie, cette transition se caractérisant par le retournement d'une partie (ici la partie supérieure) du domaine de fermeture de Néel. La symétrie du système (les 2 composantes planaires du domaine de fermeture de Néel opposées l'une à l'autre) est ainsi progressivement rompue.

Cette dissymétrie est aussi caractérisée par la propagation de l'un des vortex de surface le long de la paroi de Bloch. Nous pouvons faire l'analogie avec le retournement d'un domaine magnétique dans une couche mince. Un domaine se retourne soit de façon cohérente, par rotation tous les moments dans celui-ci, soit de façon abrupte par la propagation d'une paroi magnétique. Un objet 2D (le domaine) est alors retourné par la propagation d'un objet 1D (la paroi). On a ici un phénomène similaire mais à une dimensionnalité plus basse : la paroi (objet 1D) est retournée par la propagation d'un vortex (objet 0D).

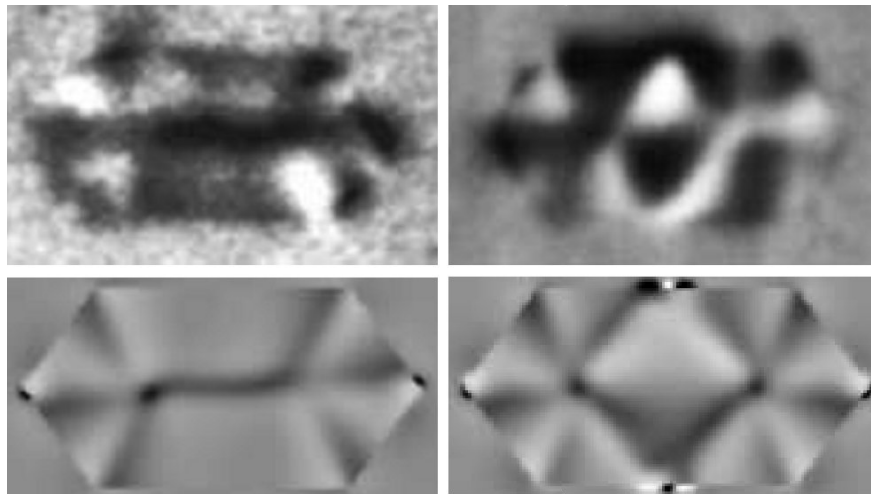
Ce retournement est de plus un phénomène hystérétique. Il a lieu entre 95 mT et 100 mT en champ montant et entre 65 mT et 60 mT en champ descendant. Comme nous l'avons vu plus haut, ce retour-

nement est à priori relativement indépendant de la hauteur du plot dans notre gamme d'épaisseur.

### iii Caractérisation magnétique

Des études de magnétométrie (VSM) ont montré<sup>145</sup> que ces plots ne présentaient aucune rémanence le long de l'axe de facile aimantation (axe [001], parallèle à longueur du plot) ni pour l'axe difficile ([110], verticale du plot). De plus aucune coercivité n'est observée dans le cycle d'hysteresis. Ceci traduit la structure à fermeture de flux attendue pour la minimisation de l'énergie dipolaire du système.

Différentes configurations ont pu être observées en MFM (Fig. IV.10). La configuration *Landau* a été observée ainsi que d'autres configurations, dites *losange*, où la paroi de Bloch centrale est scindée en plusieurs parties, pour laisser le flux magnétique boucler à l'intérieur même du plot. La coexistence de ces deux structures magnétiques s'explique par une variation d'épaisseur des plots, couplée à la différence de leur géométrie qui va favoriser l'une ou l'autre des configurations. Les contrastes observés au niveau des parois de Néel à 45° révèlent la structure Néel asymétrique de celles-ci.



**FIG. IV.10:** Vue MFM (haut) et simulation de contraste (bas) pour 2 configurations magnétiques de plots de Fer. *Images issues de la ref.*<sup>144</sup>

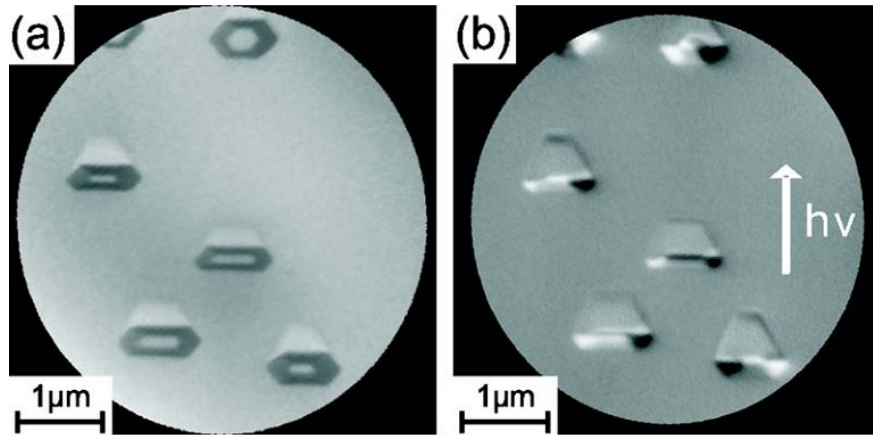
### iv Caractérisation du renversement de domaine de fermeture de Néel

Des études par X-PEEM ont été réalisées<sup>145</sup> sur les structures Landau. Ce système a été utilisé pour observer le retournement du domaine de fermeture de Néel présenté à la section précédente. Cette technique (cf. Chap. I) donne accès à l'information magnétique sur la surface du plot pour des orientations planaires de l'aimantation. Cette information est donc directement liée à la partie supérieure du domaine de fermeture de Néel (Fig. IV.11).

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, cette technique de caractérisation ne permet pas l'application de champs planaires de l'ordre de grandeur requis par le phénomène (100 mT) durant l'observation. Le retournement a donc été observé de façon statistique sur un ensemble de plots, avant et après l'application d'un champ en dehors de la chambre d'analyse.

Le retournement décrit par la simulation peut être contrôlé suivant le sens du champ appliqué. Si celui-ci est appliqué parallèlement à la partie supérieure du domaine de fermeture, le retournement aura lieu dans la partie inférieure, et vice-versa (Fig. IV.9). Dans le même temps, les simulations





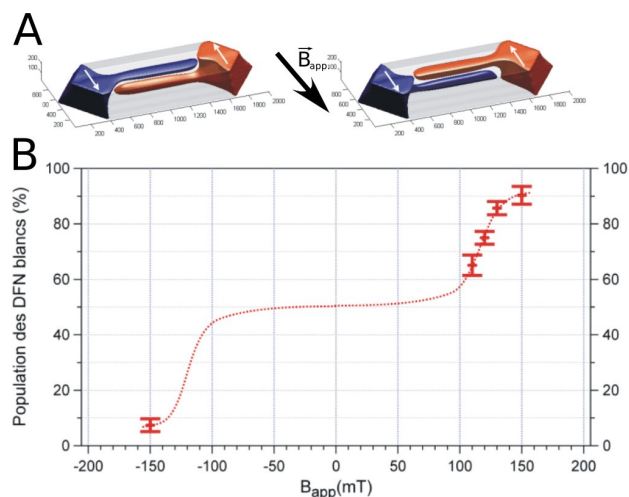
**FIG. IV.11:** Cliché LEEM (a) révélant la topographie, et X-PEEM (b) révélant l'aimantation en surface suivant la direction des photons (flèche). On observe les parties supérieures des domaines de Néel, par une bande noire ou blanche le long du plot. *Images issues de la thèse de F. Cheynis<sup>145</sup>*

ont toujours prédit lors du retour à la rémanence, le retournement de la partie supérieure et exclusivement de celle-ci (ceci pourrait être expliqué par la présence en base des arrêtes du plot, de composantes verticales de l'aimantation non négligeables).

L'observation du retournement a donc été rendu possible sur des plots qui, après l'application d'un champ magnétique, présentaient une partie supérieure du domaine de fermeture de Néel antiparallèle au champ appliqué (Fig. IV.12-A).

Le résultat de cette étude (Fig. IV.12-B), montre que pour un champ planaire supérieur à 100 mT, toutes les parois dans les plots en configuration Landau ont vu leur domaine de fermeture de Néel se retourner.

Néanmoins cette étude statistique, si elle démontre le retournement d'une assemblée de plot, ne permet pas de valider de façon expérimentale le processus de retournement. C'est pour cela qu'une



**FIG. IV.12:** **A.** Principe du retournement du domaine de fermeture de Néel si le champ est appliqué parallèlement au domaine supérieur. Après avoir retiré le champ magnétique (2<sup>e</sup> image), le domaine supérieur se retourne modifiant ainsi la chiralité du domaine de fermeture. **B.** Évolution en fonction d'un champ appliqué ex-situ du ratio de plots présentant une partie supérieure du domaine de fermeture de Néel blanche. *Images issues de la thèse de F. Cheynis<sup>145</sup>*

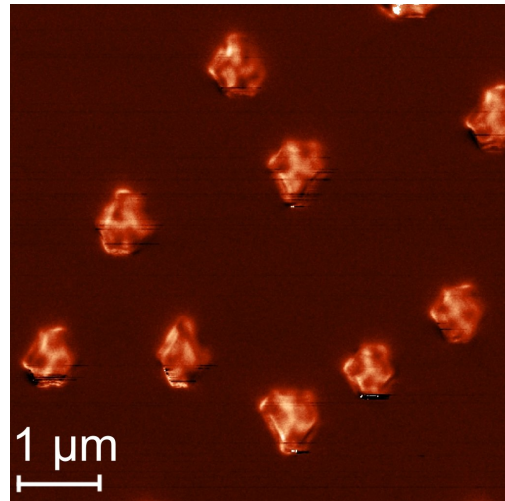
étude in-situ est nécessaire pour déterminer les différentes étapes du processus (et les champs associés). C'est en partie l'objet de notre étude sur ces systèmes.

### c Premières caractérisations magnétiques des plots de Cobalt

Des observations MFM ont été réalisées (Fig. IV.13). A la manière des contrastes obtenus pour les plots de Fer, ceux-ci adoptent une structure à fermeture de flux. Il faudra réaliser des simulations micromagnétiques pour pouvoir analyser ces contrastes.

Comme annoncé au début de cette description, l'étude de ces plots de cobalt est récente, aussi je ne peux fournir beaucoup plus de détails sur leur structure.

**FIG. IV.13:** Image MFM de l'échantillon de Plots de Co. Cliché réalisé par O. Fruchart



### Conclusion

Nous avons donc défini les objets avec lesquels nous avons tenté de répondre aux différentes problématiques présentées dans la première section. La section suivante présente l'observation par Microscopie de Lorentz en mode Fresnel (associée à quelques reconstructions via la TIE) sur ces deux systèmes.

## IV.3 Microscopie de Lorentz sur les Nanostructures

Nous devons tout d'abord définir ce qu'il est possible d'espérer de ces observations. En effet, une nanostructure par définition, n'a pas une épaisseur homogène sur de longues distances. Les outils permettant de s'affranchir de la contribution du potentiel interne présentés dans les chapitres précédents ne peuvent être utilisés ici.

L'analyse des images présentées dans ce chapitre n'est donc pas quantitative pour l'induction magnétique dans les plots. Par contre, la quantification a lieu sur les champs magnétiques auxquels apparaissent les phénomènes décrits. C'est d'ailleurs à ce niveau que la Microscopie de Lorentz peut proposer de grandes capacités d'analyse dans l'avenir : les mesures in-situ. Nous utiliserons comme dans le chapitre précédent, la simulation de clichés de contrastes de Fresnel à partir de simulations micromagnétiques pour valider les contrastes de Fresnel observés.

Ces systèmes sont aussi un parfait sujet d'étude pour comparer une nouvelle fois la résolution de la technique interférométrique (TIE) et l'étude directe des déflexions (DPC). Nous n'avons pas utilisé l'holographie électronique car les objets sont trop grands par rapport au champ de vue disponible. De plus la caractérisation recherchée ici est une étude dynamique (en restant dans la gamme de la seconde) ce qui n'est pas conciliable avec les temps d'acquisition requis par l'holographie (de l'ordre

de la minute). Pour finir, la forme des échantillons MET n'est pas adaptée à ce type d'observation. L'observation est donc centrée autour des contrastes de Fresnel couplés à la simulation, et de la reconstruction par la résolution de la TIE qui sera une nouvelle fois comparée au DPC. Nous proposons aussi une nouvelle forme d'interprétation des contrastes de Fresnel, par l'utilisation de la méthode des phase géométriques<sup>162</sup>.

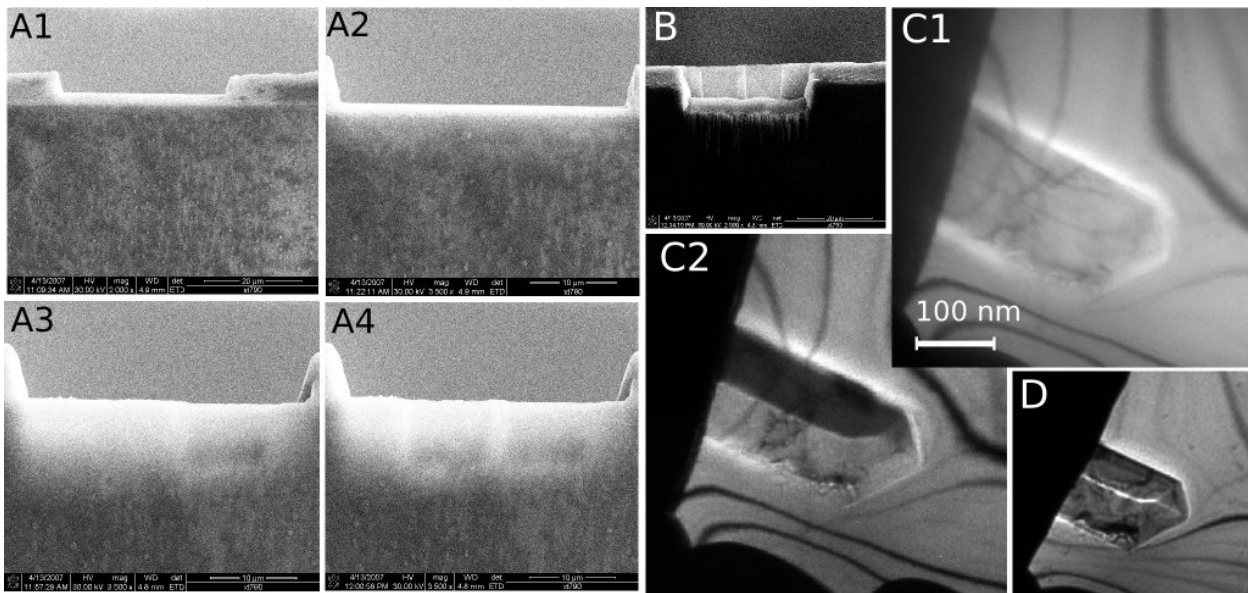
### a Méthodes utilisées

Le retournement de domaine de fermeture de Néel ainsi que la transition vortex-paroi sont étudiés ici en microscopie de Lorentz. L'intérêt de l'observation sur un plot unique (par rapport à l'étude statistique apportée par le X-PEEM) est de pouvoir imager directement et intégralement le phénomène.

#### i Préparation des échantillons

Cette étude ne pourrait être présentée complètement si je n'inclusais un bref aperçu de la préparation de ces échantillons pour la microscopie électronique à transmission.

Nous avons tenté de préparer les échantillons sortis du bâti de DLP par plusieurs méthodes originales. Nous avons commencé par une préparation FIB (Focused Ion Beam) d'une géométrie en Vue Plane. Cette méthode, très peu décrite dans la littérature, avait déjà permis de réaliser une étude des propriétés magnétiques sur de la magnétite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) déposée sur saphir<sup>163</sup> (comme nos plots). Les résultats obtenus en vue plane étaient très concluants. Nous avons donc essayé de reproduire le même type d'échantillon, à l'aide d'une attaque par la tranche du substrat. Si un résultat préliminaire nous a effectivement permis d'observer les premiers contrastes magnétiques dans un plot (Fig. IV.14), l'expérience n'a malheureusement pas été reproductible sur d'autres plots. Les zones présentaient soit un état de surface induisant de trop nombreux contrastes parasites, soit une absence totale de plots (les zones minces présentant une surface d'environ  $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ , avec des zones observables parfois limitées à  $2\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m}$ ).



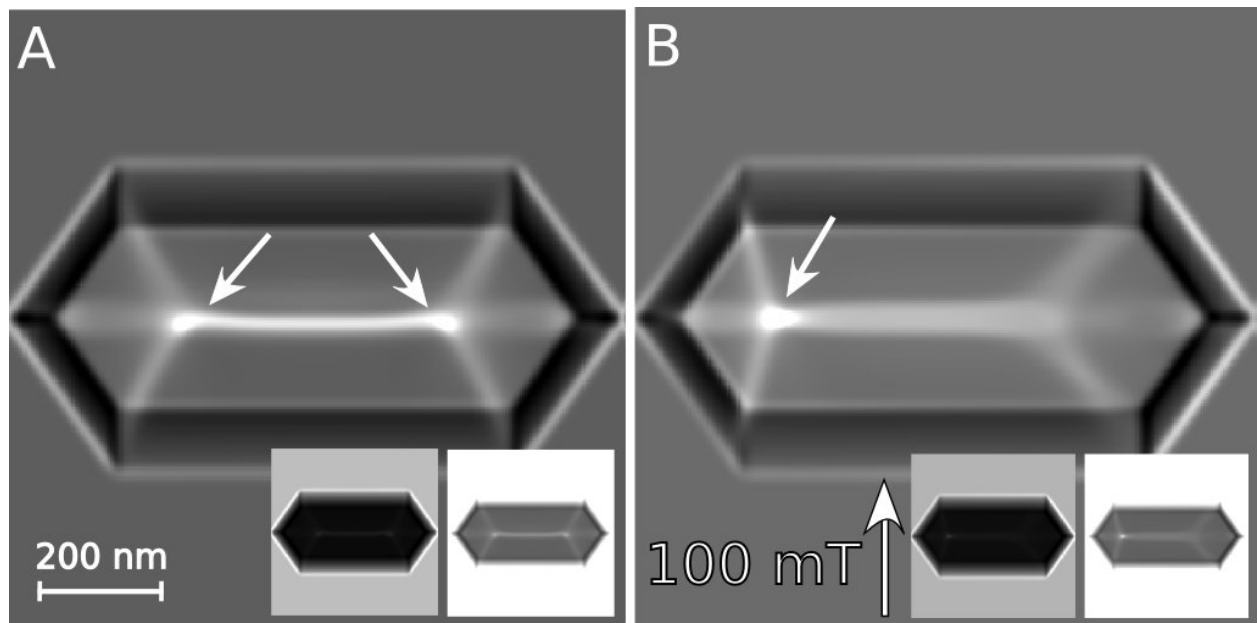
**FIG. IV.14:** A1-4 Clichés MEB pris lors de la préparation de la lame mince par FIB. Les 4 étapes montrent le décaissement, puis l'amincissement du substrat (les plots sont visibles sur la couche) ayant une épaisseur initiale de  $10\ \mu\text{m}$ . B Image finale de la préparation au MEB, vue de l'autre côté. C.1-2 Image en champ clair (1) et en contraste de Foucault (2) d'un plot, à moitié caché par la fenêtre de préparation. D Contrastes de Fresnel du même plot. Images obtenues avec le microscope JEOL 3010

Nous avons aussi tenté une préparation par attaque chimique<sup>145</sup> sans aucun succès face à la résistance de l'alumine. Les échantillons en forme de biseau préparés au tripode n'ont, eux non plus, pas donné de résultats. Nous avons finalement utilisé une préparation classique par polissage en faces parallèles et attaque ionique à faible angle. C'est alors que nous avons obtenu un échantillon de bonne qualité permettant l'observation de plus d'une centaine de plots.

## ii Simulation et microscopie

Comme nous l'avons fait pour les simulations 2D sur les couches minces, nous avons développé la simulation de clichés de Fresnel à partir des simulations micromagnétiques 3D. Nous devons prendre ici en compte l'aspect topographique, qui joue un rôle prédominant dans l'apparition de ces contrastes. Cette épaisseur joue à la fois un rôle dans le déphasage magnétique, mais aussi et avant tout, dans le déphasage dû au potentiel interne.

La méthode utilisée pour le calcul du déphasage magnétique est encore l'intégration des moments magnétiques le long de l'axe optique du microscope. Pour obtenir une bonne intégration, notamment lors de la simulation de clichés avec un plot incliné, nous avons choisi la méthode des barycentres, répartissant un noeud de la simulation micromagnétique se trouvant hors du nouveau maillage, dans les 4 noeuds à proximité. Nous n'avons pas testé ici la méthode de simulation en multislice (cf. Annexe H). Au vu des résultats très peu différents amenés par celle réalisée pour les couches minces, et notre regard purement qualitatif concernant les clichés, elle ne semblait pas judicieuse à mettre en place (mais pourrait être réalisée pour expliquer certains contrastes).



**FIG. IV.15:** Simulations du cliché de Fresnel pour un plot de Fer simulé par GL-FFT. La simulation comprend uniquement la composante magnétique du déphasage. Les inserts présentent la prise en compte du potentiel interne ainsi que l'atténuation d'amplitude de l'onde (deux images présentées avec deux niveaux de gris différents). La défocalisation dans les deux cas est de  $50 \mu\text{m}$ . Les deux configurations proposées se situent à  $0 \text{ mT}$  (A) et  $100 \text{ mT}$  (B) après le renversement du domaine de fermeture de Néel. Les flèches pointent les vortex magnétiques de surface de la paroi de Bloch.

Les simulations nous montrent qu'a priori, l'étude du renversement du domaine de fermeture de Néel peut être rendu relativement aisé par l'étude du contraste de Fresnel (Fig. IV.15). Les deux

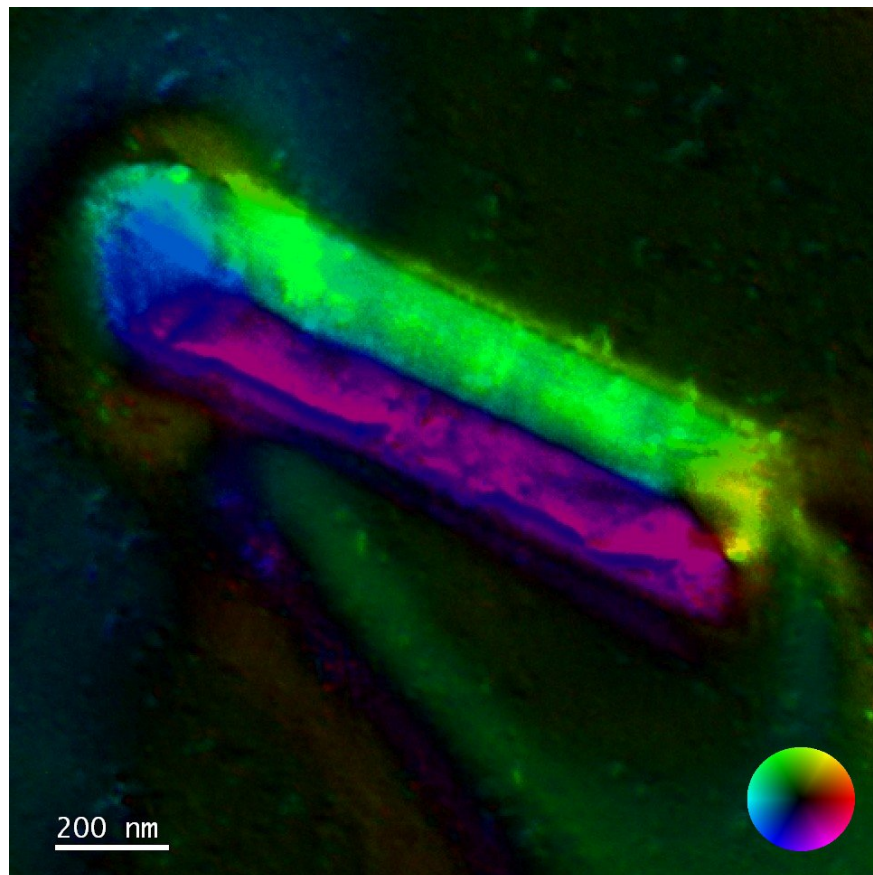
vortex de surface apparaissent clairement le long de la paroi de Bloch dans la configuration initiale, indiqués dans la Fig. IV.15 par des flèches. Après le retournement un seul vortex semble identifiable. De plus on constate une diminution de l'intensité de la paroi de Bloch après le passage en paroi de Néel asymétrique.

Ceci s'explique par la suppression de la compensation entre les deux parties (inférieures et supérieures) du domaine de fermeture de Néel. Les deux composantes devenant parallèles, les électrons sont d'autant plus défléchis, diffusant le contraste sur une plus grande surface. Il faut noter que le contraste dominant demeure celui induit par la fermeture de flux magnétique tournant autour du plot. De plus, la contribution de l'amplitude et du potentiel interne va rendre les choses beaucoup plus complexes (Fig. IV.15-inserts).

Nous avons donc étudié si les données fournies par les méthodes de cartographie de l'aimantation pouvaient apporter un élément de réponse.

### iii DPC Vs TIE

La méthode de cartographie DPC est apparue très rapidement difficile à mettre en oeuvre. Outre le problème de résolution dans certains cas (variant d'une expérience à l'autre), l'application d'un champ magnétique modifie légèrement les propriétés optiques du microscope ce qui, en définitive, ne gêne pas l'imagerie puisque la principale aberration introduite est la défocalisation (qu'il est facile de réajuster en jouant sur la focalisation de la MiniLens). Par contre, l'effet dans le plan focal (modification de la position de ce plan dans la colonne) nous est très préjudiciable. Le diaphragme du microscope n'est alors plus parfaitement aligné avec le plan focal et il faut alors effectuer un



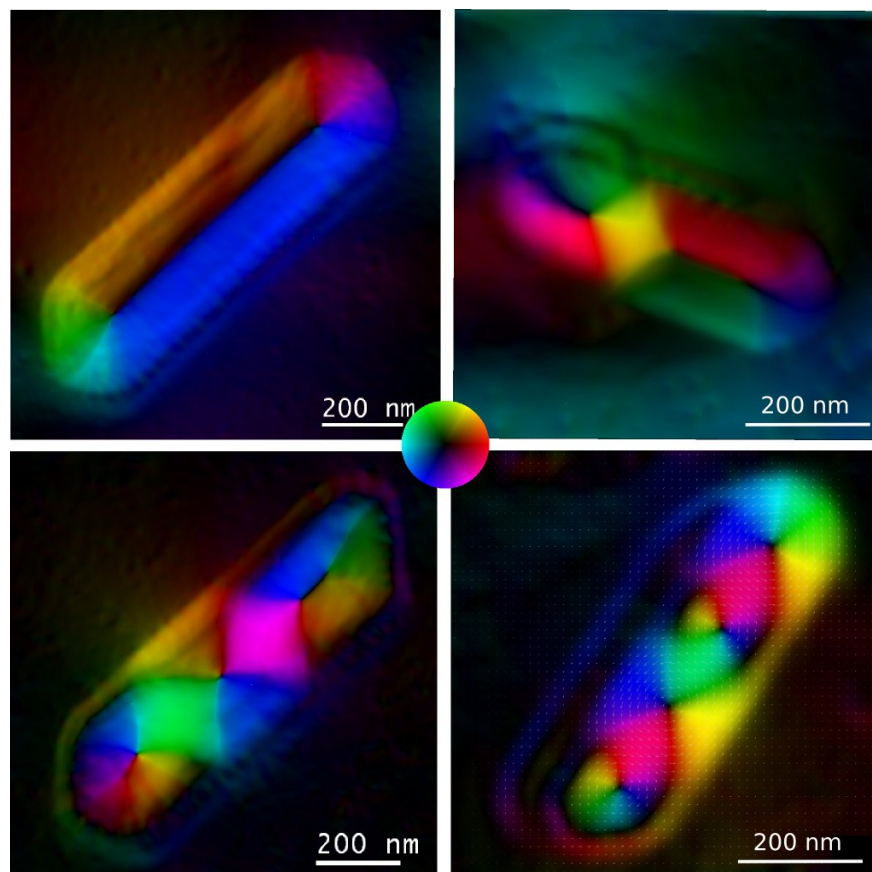
**FIG. IV.16:** Cartographie couleur de l'induction magnétique sur un plot de Fer, acquise par DPC. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

nouvel alignement du mode Foucault.

La cartographie obtenue en Differential Phase Contrast (Fig. IV.16) permet valider plusieurs choses :

- la calibration de l'angle de rotation entre les défectrices de tilt du microscope et le plan image (cf. Chapitre 2)
- la méthode de projection que nous utilisons pour la simulation est relativement cohérente : les cartographies vectorielles simulées et projetées montrent les même distributions
- la structure magnétique est effectivement un structure à fermeture de flux avec sa paroi de Bloch centrale

Par contre nous ne pouvons tirer d'information sur la position des vortex ou sur la configuration du domaine de fermeture de Néel. En effet, la plus importante contribution à l'induction magnétique dans ces plots est issue des domaines autour du plot. Aussi, la contribution planaire des domaines de fermeture de Néel est "noyée" dans celle issue de ces domaines. L'observation de la bande noire centrale correspondant à la paroi de Bloch pourrait permettre de distinguer ce retournement. En effet, une fois les deux parties du domaine de fermeture de Néel alignées parallèlement (*i.e.* après retournement) la compensation des deux composantes n'est plus vérifiée. On pourrait donc observer une variation de taille de cette bande noire dans les cartographie. Mais là encore ce contraste est situé dans une zone de fortes contributions magnétiques aussi, une faible variation est-elle difficilement détectable.

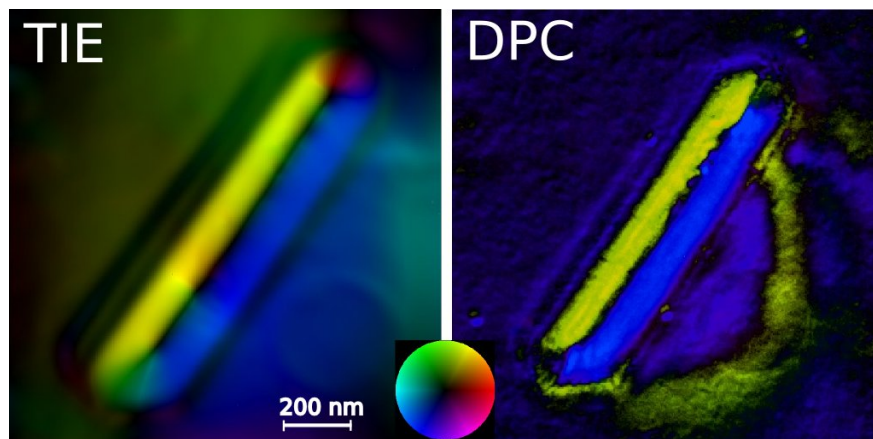


**FIG. IV.17:** Plusieurs configurations magnétiques pour les plots de Fer : Landau, Double Landau, Triple-Landau et Quadruple-Landau (les 3 derniers sont regroupés dans le terme configuration losange). *Images de gauche obtenues sur le FEI Titan, images de droite sur le JEOL 3010*

La technique par résolution de la TIE s'est finalement révélée plus satisfaisante. En fait, l'impact du potentiel interne est minimisé par l'application préalable de la méthode d'affranchissement de la contribution due au substrat (cf. Chap. III). Demeure la contribution due au plot lui-même. Mais si les images ne sont pas quantitatives, elles révèlent tout de même très bien la configuration magnétique des plots. Nous avons pu observer plusieurs types de configurations (Fig. IV.17) :

- Des structures Landau
- Des structures losanges, que l'on nommera par la suite double-Landau pour une structure présentant deux parois de Bloch, triple-Landau pour trois parois de Bloch (ou trois vortex), etc...

Il s'est avéré aisé de préparer l'une ou l'autre de ces configurations par un jeu (très empirique) sur le champ appliqué. Une saturation des plots le long de la normale au plan permet par exemple de retrouver tous les plots (à quelques exceptions près) dans une configuration Landau simple. Un cycle d'aimantation planaire transverse (*i.e.* dans la direction de la petite dimension du plot) fait en revanche basculer les plots dans des configurations losange.



**FIG. IV.18:** Comparaison entre une acquisition DPC et TIE sur le même plot. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

La comparaison des 2 techniques sur un même plot est très parlante quant à la résolution et à la qualité de la cartographie obtenue (Fig. IV.18).

La quasi-totalité de nos études se sont finalement limitées à l'utilisation du contraste de Fresnel couplé à la simulation. Ceci permet une dynamique dans les expérimentations (seulement un cliché nécessaire) et d'éviter de prendre en compte des artefacts de reconstruction (variation minimale des cartographies entre deux valeurs de champs appliqué par exemple) pour des faits physiques.

## b Etude du retournement d'un domaine de fermeture de Néel

Nous avons effectué de nombreux cycles d'aimantation pour essayer d'une part, d'observer le renversement du domaine de fermeture de Néel, et d'autre part de quantifier le champ de ce retournement.

### i Application d'un champ planaire dans le microscope

Le champ magnétique appliqué à l'aide de la lentille objectif est parallèle à l'axe optique du microscope. Aussi, pour pouvoir appliquer dans notre cas un champ transverse au plot, nous inclinons l'échantillon pour décomposer ce champ magnétique en une composante perpendiculaire et une composante planaire sur le plot. Nous devons donc en permanence avoir à l'idée que l'application d'un

champ transverse implique dans le même temps un champ perpendiculaire au plot, de norme bien supérieure au vu des angles utilisés (de l'ordre de  $20^\circ$ ). Les valeurs de champ que nous indiquons dans ce chapitre sont, sauf indication contraire, les valeurs de la composante planaire.

Pour prendre en compte cette contrainte, nous avons réalisé des simulations non plus en champ uniquement transverse, mais en champ oblique. Celles-ci ont montré que l'impact de la composante perpendiculaire pour le retournement consistait en une diminution du champ où celui-ci intervient. La transition passe ainsi de 95 mT pour un champ purement planaire à seulement 43 mT pour un champ planaire appliqué conjointement à une composante normale du champ pour une inclinaison de  $20^\circ$  par rapport à la normale. Ce phénomène pourrait s'expliquer par la modification du terme de Zeeman dans le calcul énergétique, couplé à la diminution de l'effet d'échange<sup>145</sup> : l'application d'une composante perpendiculaire diminue l'effet dipolaire ce qui entraîne une rotation plus rapide de l'aimantation dans les domaines<sup>164</sup>. L'échange a alors tendance à favoriser plus facilement la configuration en domaines de fermeture de Néel parallèles (et donc à favoriser le retournement). Mais ce terme ne varie pas suffisamment pour expliquer à lui seul cette diminution, c'est pourquoi nous pensons devoir y associer le terme Zeeman.

L'origine de cette évolution de champ de transition reste délicate à interpréter.

## ii *Etude sur le JEOL 3010*

Expérimentalement, il n'est pas si aisé de distinguer les deux configurations présentées en Fig. IV.15. Les figures de contraste expérimentales sont perturbées par la modification de l'amplitude de l'onde (présence de défauts induisant des zones très sombres, effets de bords,...) mais aussi par la structure magnétique elle-même. Nous avons ainsi cru observer le phénomène à de nombreuses reprises avant de nous raviser. Par exemple l'apparition d'un "canal" séparé par deux parois, pouvant rappeler la paroi de Néel asymétrique, s'est finalement révélée être une simple variation de la défocalisation dans nos images (due à l'excitation de la bobine objectif). Néanmoins, nous avons proposé une visualisation du renversement en statique (Fig. IV.19).

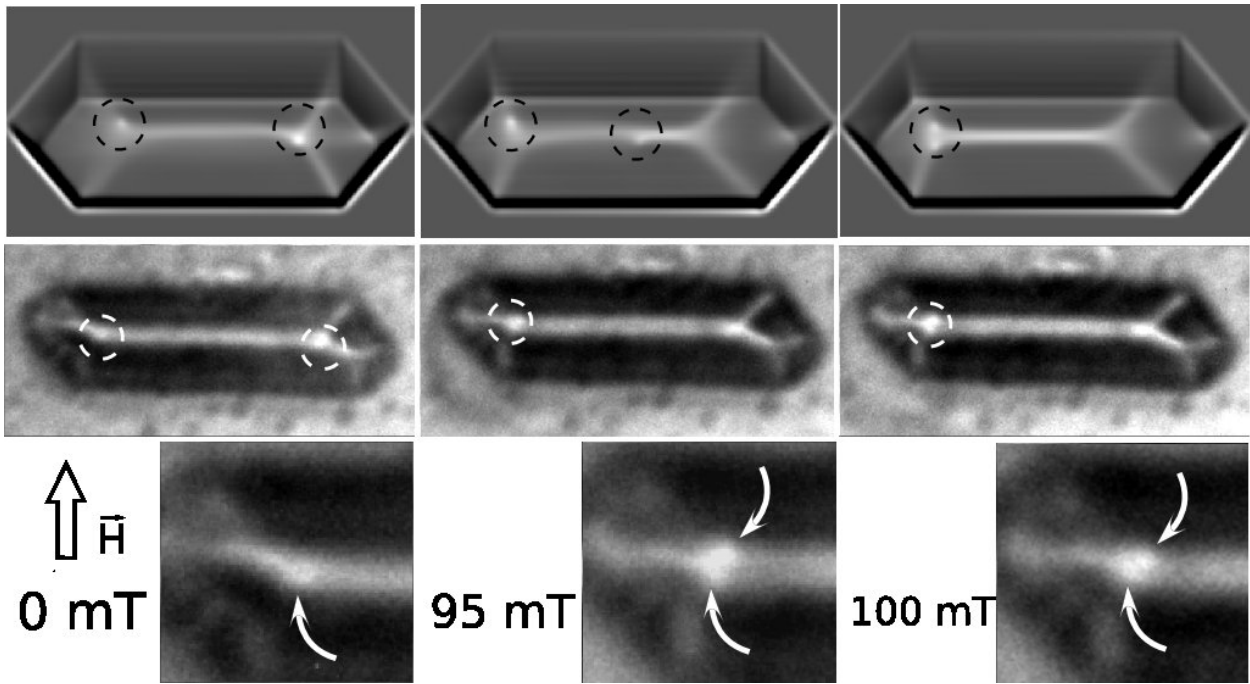
Comme nous l'avons vu précédemment, nous devons incliner l'échantillon pour pouvoir lui appliquer un champ transverse. Ce tilt se révèle utile pour une autre raison : les deux vortex n'étant pas à la même hauteur dans le plot, ils ne se chevauchent plus sur la paroi de Bloch. Un vortex semble au-dessus de la paroi tandis que l'autre semble être situé de l'autre côté (vortex entourés de cercles pointillés sur les simulations de la Fig. IV.19). Nous pouvons alors observer sur les images expérimentales l'apparition d'un point double à l'extrémité gauche de la paroi de Bloch (cercles pointillés blanc sur les clichés à 95 et 100 mT et zooms de la Fig. IV.19).

Si cette observation semble cohérente avec les simulations, il nous est impossible par cette méthode de définir le réel moment de passage du vortex. De plus la différence de contraste entre les deux configurations est très faible. La transition observée est continue, et aucun saut d'un état à l'autre n'a pu être observé. Cette observation nécessite en outre une géométrie bien particulière du plot (hauteur suffisante pour "éjecter" les vortex de la paroi de Bloch lors du tilt de l'échantillon) et n'a été reproduite qu'une seule fois.

On pourrait par exemple proposer une autre explication à cette variation de contraste. Le champ planaire induit une légère rotation de l'aimantation dans les domaines. Aussi plutôt qu'une paroi de Bloch à  $180^\circ$  au centre du plot, on est en présence d'une paroi plus proche de  $90^\circ$ . L'intensité obtenue par les contrastes de Fresnel est alors diminuée. La configuration que nous interprétons en termes de vortex superposés pourrait très bien être une sur-intensité associée à la rotation de l'aimantation dans les domaines.

Nous avons donc effectué cette analyse sur le Titan qui possède une cohérence beaucoup plus importante. Ceci permet d'augmenter l'information disponible dans de simples contrastes de Fresnel.





**FIG. IV.19:** Etude du renversement de domaine de fermeture de Néel par contrastes de Fresnel. **1<sup>ère</sup> ligne** Clichés simulés pour différents champs magnétiques appliqués. Les cercles pointillés noirs indiquent la position des vortex décrits dans le texte. La défocalisation utilisée pour la simulation est de  $20 \mu\text{m}$  et la convergence est de  $\theta_c = 0,1 \text{ mrad}$ . **2<sup>e</sup> ligne** Cliché de Fresnel expérimentaux pour les mêmes champs magnétiques. Les cercles pointillés blancs indiquent la position des vortex décrits dans le texte. Le tilt utilisé pour la simulation et l'expérience est de  $15^\circ$ . **3<sup>e</sup> ligne** Valeur et direction du champ magnétique appliqué. Les images sont un agrandissement, sur le vortex de gauche, de l'image correspondante sur la ligne supérieure. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

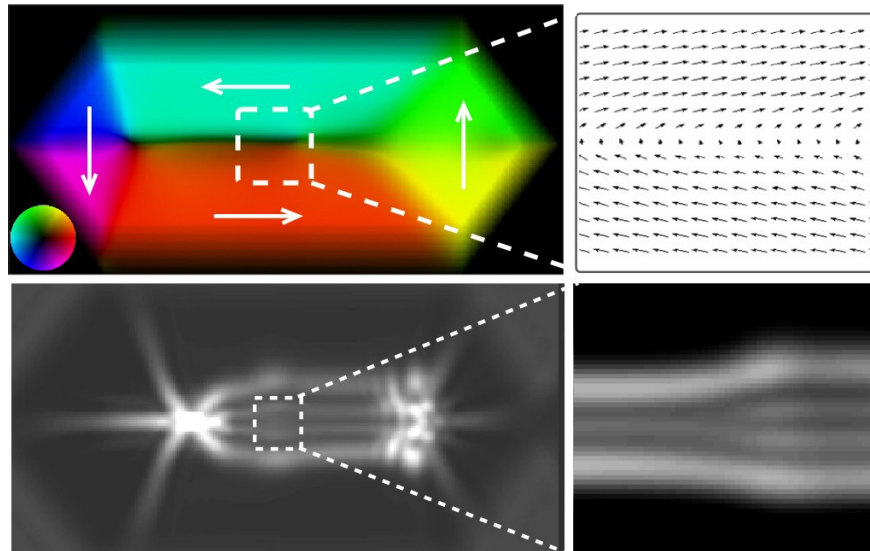
### iii Etude sur le TITAN

La forte cohérence du canon FEG produit des franges d'interférence que nous avons déjà utilisées auparavant dans les études d'holographie (et notamment pour l'holographie in-line en Annexe I-13). Ici, nous allons nous attacher aux franges produites au niveau de la paroi de Bloch. L'étude par la simulation du comportement de cette paroi à forte défocalisation (Fig. IV.20) nous montre que le vortex séparant la configuration en Néel asymétrique (domaines de fermeture parallèles) et Bloch asymétrique (domaines de fermeture parallèles) modifie l'ordre des franges.

L'image zoomée (Fig. IV.20) montre l'apparition d'un saut d'interférence avec le décalage des zones constructives et destructives au niveau de la position du vortex.

Si l'on observe la paroi à très forte défocalisation au cours du processus d'aimantation transverse on peut déceler ce vortex pour les champs où il se trouve au milieu de la paroi de Bloch (Fig. IV.21, images de gauche). Cette signature est notamment présente sur les images prises à 66, 71, 77 et 83 mT (pointée par une flèche sur les images de gauche dans la Fig. IV.21). On peut de cette manière quantifier le champ magnétique correspondant au retournement abrupt du domaine de fermeture de Néel (ici le retournement intervient entre 71 et 77 mT). L'épaule dans les franges est néanmoins difficilement décelable pour un œil non habitué à l'observation de clichés de microscopie électronique.

Cet épaule est d'autant plus visible lorsqu'il est observé en incidence rasante. J'invite le lecteur à essayer d'observer cette figure en tenant le livre horizontalement, l'œil près du bord de la page. C'est ainsi que dans les premières images haute résolution on révélait les dislocations. Depuis, une méthode utilisant un principe similaire à la reconstruction de phase en holographie permet, par



**FIG. IV.20:** Configuration micromagnétique intégrée dans le plan de l'image (en haut) et simulation de Fresnel à large défocalisation ( $100 \mu\text{m}$ ). L'image de droite est un zoom sur l'épaule constaté au niveau du vortex dans les contrastes de Fresnel.

l'observation de sauts de phase, de retrouver la position de ces dislocations. C'est l'Analyse des Phases Géométriques<sup>162</sup> présentée ci-dessous.

#### iv Géométrie de Phase

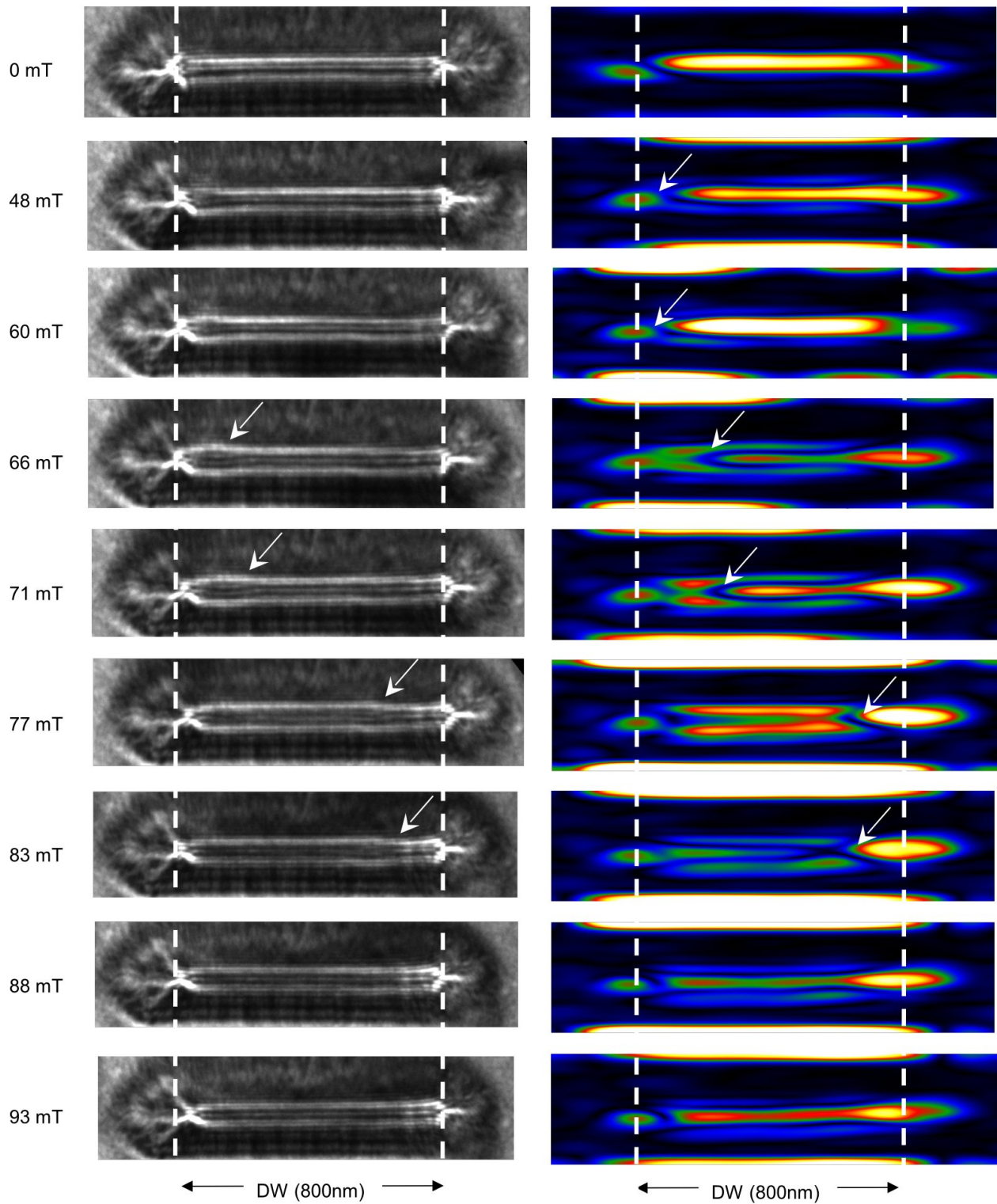
La méthode d'analyse des phases géométriques est une technique de traitement d'image relativement simple qui n'a été démocratisée qu'avec l'apparition des premiers ordinateurs permettant un traitement d'image rapide. D'ailleurs, tout microscopiste vous dira qu'un jour, bien avant le papier référence dans le domaine<sup>162</sup>, il avait déjà mis en oeuvre la méthode des phases. En ce qui nous concerne, nous avons aussi utilisé la méthode des phases géométriques lors de nos reconstructions d'hologrammes dans ce manuscrit.

Pour la Haute Résolution et la recherche de défauts structuraux, l'idée est de sélectionner une zone dans l'espace réciproque correspondant à une fréquence spatiale de l'agencement du cristal et de reconstruire l'onde correspondant à cette fréquence. Un agencement parfait ne produirait qu'une image de phase plate et sans variations. Par contre la présence d'une modification de la fréquence spatiale, où qu'elle soit dans l'image, va être matérialisée par une variation brusque de l'image de phase (un saut de phase).

Nous avons réalisé la même opération sur nos images en contrastes de Fresnel où apparaît une variation dans la figure d'interférence. Dans ce cas, la méthode fait apparaître un très important saut d'amplitude dans l'image, au niveau de la position du vortex (Fig. IV.21- images de droite). L'image de phase est par contre très bruitée et n'est pas présentée ici.

Pour le plot présenté, le vortex est alors aisément identifiable. Il se propage donc lentement au début du processus d'aimantation (jusqu'à 71 mT) puis traverse la paroi avec un saut brusque pour un champ de 77 mT. Le processus et la valeur du champ sont proches de ceux prévues par la simulation (nous sommes ici à une inclinaison de  $17^\circ$ , contrairement aux simulations effectuées avec un angle de  $20^\circ$ ). Ce phénomène est hystérétique et le saut de retour a lieu pour une valeur de champ de 63 mT.

Nous avons étudié le retournement du domaine de fermeture de Néel de plusieurs plots. Tous présentent les mêmes caractéristiques que celles décrites ci-dessus. Les valeurs extraites des champs de



**FIG. IV.21:** Série d'aimantation transverse montrant le retournement du domaine de fermeture de Néel par propagation d'un vortex. Les images de gauche sont les clichés de Fresnel pris avec une défocalisation de  $500 \mu\text{m}$ . Les images de droite montrent l'amplitude pour une onde reconstruite en  $(q_x, q_y) = (0, 0.06 \text{ nm}^{-1})$  par la méthode de Géométrie de phase. *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

saut varient légèrement entre les plots (cf. Tab. IV.1).

Rapport d'aspect ( $h/l$ )	Champ de retournement (montée)	Champ de retournement (descente)
0,33	77 mT	63 mT
0,1	117 mT	92 mT
0,1	107 mT	99 mT

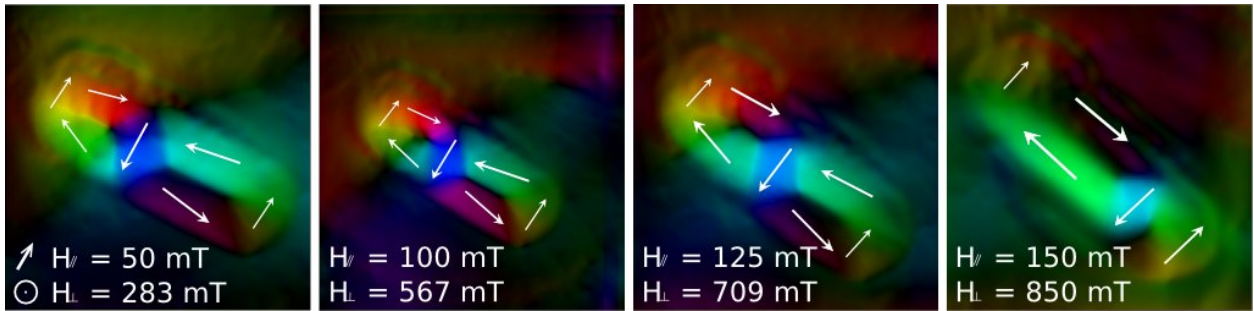
**TAB. IV.1:** Tableau regroupant les valeurs de retournement du domaine de fermeture de Néel en champ montant et descendant pour différentes valeurs du rapport d'aspect des plots.

### c États Double-Landau bistables

Durant nos nombreuses tentatives d'observer un vortex se déplacer le long de la paroi centrale nous avons pu voir une configuration magnétique originale : une structure losange bistable où la position d'équilibre du losange oscille entre deux positions.

Pour décrire ce phénomène, je vais suivre la procédure expérimentale qui nous a amenée à son observation. Nous avons donc tout d'abord étudié l'évolution sous champ d'une configuration récurrente dans les plots de Fer : la structure double-Landau (Fig. IV.17).

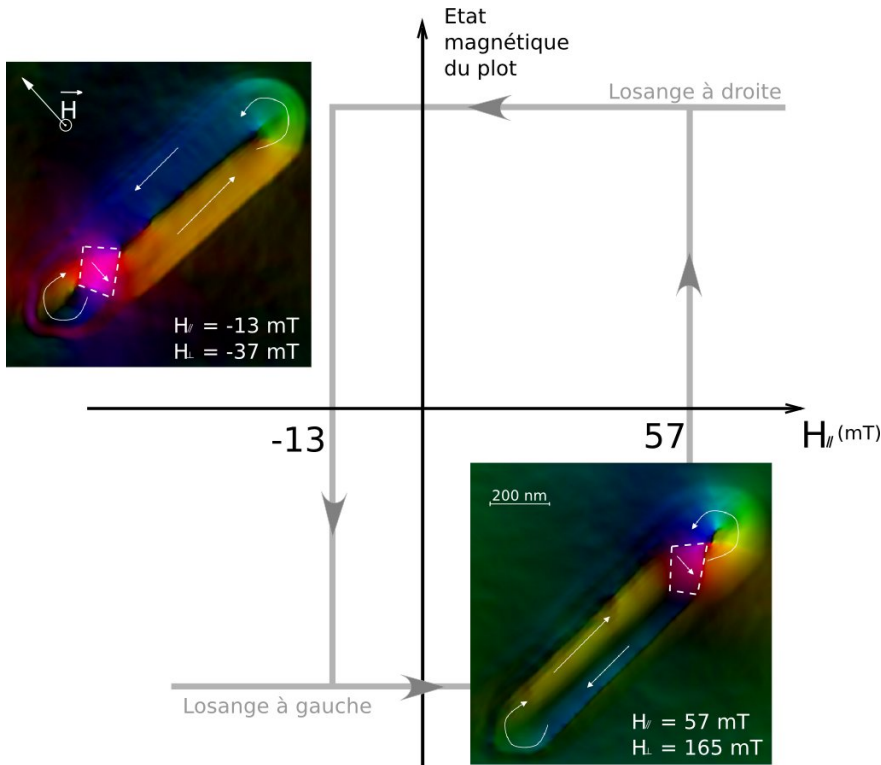
#### i Etude de la configuration Double-Landau



**FIG. IV.22:** Etude en champ montant d'une configuration losange. Le champ est appliqué à la fois transversalement et perpendiculairement au plot (inclinaison de  $10^\circ$ ). L'orientation des deux composantes du champ magnétique est indiquée sur la première image. La largeur du plot est de 200 nm. Images obtenues avec le microscope JEOL 3010

Partant de cette configuration losange, nous avons étudié la possibilité de voir se propager les vortex le long de l'une des deux parois sous l'application d'un champ magnétique. Cette structure (Fig. IV.22) présente deux parois de Bloch de chiralité opposée séparant les domaines. Celles-ci sont séparées par une zone d'aimantation antiparallèle aux domaines situés aux extrémités du plot. C'est cette zone que nous nomerons par la suite "losange". L'application du champ magnétique, avec toujours une composante transverse et une composante perpendiculaire, tend à déplacer cette zone d'aimantation le long du plot. Une des deux parois de Bloch s'agrandit ainsi au détriment de l'autre.

Ce processus de translation est parfaitement reproductible et contrôlé par l'application du champ magnétique. Nous avons ainsi trouvé pour certains plots un nombre très important d'états intermédiaires pour la position de cette zone centrale. Par contre, en effectuant l'analyse sur le TITAN où il est possible d'inverser le sens du champ magnétique appliqué, nous avons pu observer un système ne présentant que deux positions d'équilibre. Pour chacune d'entre elles, une des 2 parois de Bloch semble être passée dans un état vortex. Ce phénomène, visible sur la Fig. IV.23, est hystérétique. Là où, dans l'expérience précédente, la valeur du champ perpendiculaire était toujours positive, nous



**FIG. IV.23:** Plot présentant deux configurations stables lors de l'évolution du champ magnétique. Le tilt est ici de  $10^\circ$ . Les deux configurations sont présentées sous forme de cartographies couleur. Des flèches ont été ajoutées pour faciliter la lecture. Le cycle d'hystérésis dessiné par le comportement du plot est proposé. *Images obtenues avec le microscope FEI Titan*

avons ici une configuration très stable que seul un champ négatif peut modifier. Il reste maintenant à déterminer quelle composante du champ est responsable de ce retournement. Nous devons pour cela effectuer une expérience similaire mais en inversant l'inclinaison de l'échantillon plutôt que le champ, pour ne retourner que la composante planaire du champ magnétique.

## ii Complexification du phénomène

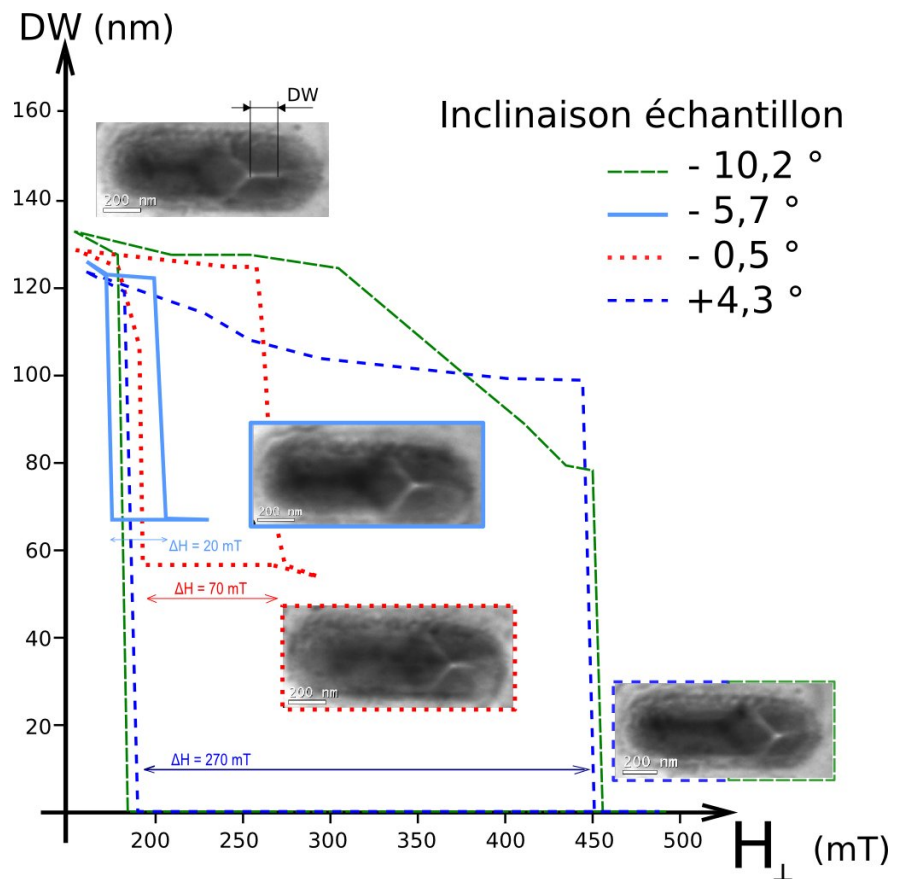
Au cours d'une étude similaire sur un autre plot, nous avons analysé la dépendance du champ perpendiculaire sur le phénomène. Cette étude, réalisée en modifiant l'inclinaison du plot est présentée en Fig. IV.24. Elle porte sur la transition entre deux positions du losange central.

Le changement d'inclinaison induit une modification du rapport composante planaire - composante perpendiculaire du champ appliqué. L'hystérésis, qui est décrit ici à l'aide de la longueur de la paroi de Bloch de droite, voit son aire se modifier en fonction de l'inclinaison du plot par rapport à la normale.

Cette observation tend à démontrer que le rôle du champ perpendiculaire est prépondérant dans le phénomène que nous sondons. Et c'est en tentant de minimiser au maximum l'aire de cette hystérèse que l'on arrive dans une configuration instable. On observe alors (pour une inclinaison dans ce cas de  $-8,5^\circ$ ), une fluctuation non périodique entre deux positions du losange central (Fig. IV.25). Cette fluctuation peut durer plusieurs minutes, voire ne jamais s'arrêter tant le champ appliqué n'est pas modifié, sélectionnant ainsi l'une ou l'autre des deux configurations.

Nous avons pu observer cette oscillation sur différents plots, mais toujours dans une configuration en losange. Elle a notamment été observée dans le cas d'une transition entre une configuration paroi et vortex de la paroi de Bloch (Fig. IV.25-C à E).

**FIG. IV.24:** Evolution de la taille de la paroi de Bloch de droite pour différentes valeurs du champ perpendiculaire (axe des abscisses) et différentes valeurs de l'inclinaison du plot (couleur).



### iii Discussion

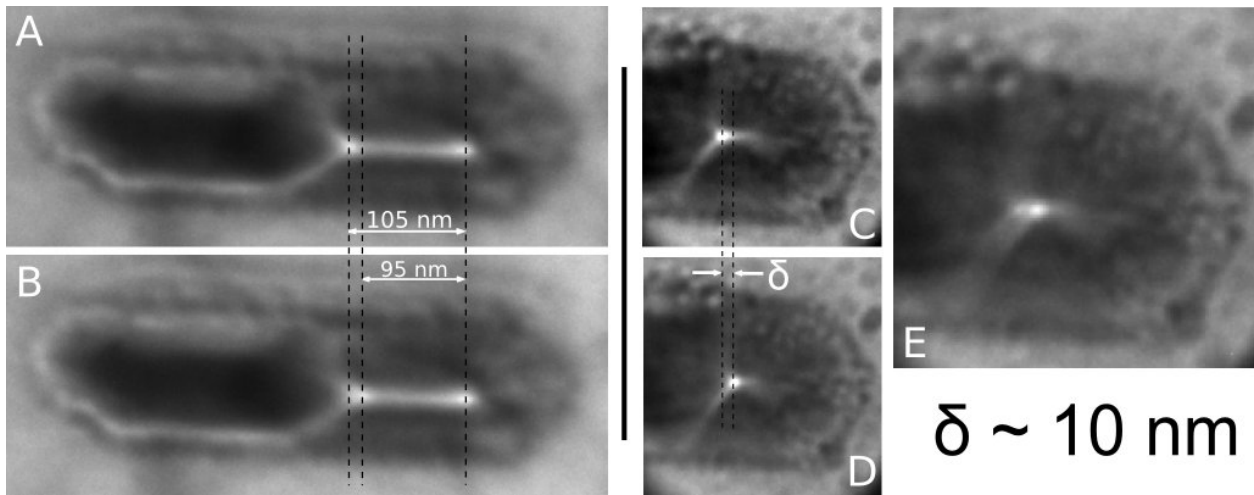
Si l'on s'arrête à la description de Van Den Berg, qui néglige l'énergie interne des parois et leurs interactions ainsi que les champs dipolaires entre les domaines, le losange peut être placé à tout endroit le long du plot. Il existe une infinité d'états dégénérés.

D'un point de vue micro-magnétique par contre, les énergies de paroi et leur interaction doivent être évaluées. Il serait donc possible, dans le cas de simulations micromagnétiques, de lever la dégénérescence en ne laissant qu'un ou quelques états énergétiquement stables (ou méta-stables). Ce sont a priori ces états que nous sondons ici.

Le phénomène physique pilotant le déplacement du losange reste à déterminer. Il pourrait s'agir d'une réponse liée au coeur des parois. Si celles-ci présentaient une polarisation différente (l'une orientée dans le sens du champ magnétique perpendiculaire, l'autre lui étant opposé), l'énergie Zeeman de la paroi opposée à ce champ pourrait expliquer son rétrécissement. Malheureusement, la Microscopie de Lorentz ne nous donne pas accès à cette composante de l'induction magnétique.

Le déplacement du losange pourrait être lié au phénomène de déplacement de vortex de surface, comme présenté précédemment. Cette fois-ci, au lieu d'assister à la propagation du vortex de surface uniquement, celui-ci pourrait entraîner l'extrémité de la paroi de Bloch avec lui. Le retournement ne serait alors plus caractérisé par la conservation de la paroi et le retournement du domaine de fermeture de Néel, mais bien par la diminution ou l'augmentation de celle-ci.

Des considérations de symétrie montrent que, mise à part les hypothèses ci-dessus, un champ magnétique perpendiculaire et/ou transverse n'induit pas de brisure de symétrie entre la droite et la gauche du plot. Il ne peut donc expliquer les déplacements observés par exemple sur la Fig. IV.22. Dans la pratique, des asymétries résiduelles (largeur, épaisseur, asymétrie des pointes en bout de plot) pourrait lever cette dégénérescence. Devant le nombre de paramètres pouvant être invoqués comme pilotant ces déplacements, nous n'avons pour l'instant pas poussé plus avant cette analyse.



**FIG. IV.25:** Présentation du phénomène observé de fluctuation stochastique entre deux états énergétiquement très proches. **A et B** Les 2 positions enregistrées autour desquelles le système oscille. La mesure de l'oscillation donne une variation des longueurs de paroi autour de 10 nm. **C, D et E** Autre configuration magnétique, sur un autre plot, où l'oscillation est apparue. L'image E a été acquise avec un temps de pose suffisamment long (de l'ordre de 2 sec.) pour enregistrer les 2 états sur la même image. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

Outre l'intérêt que présente cette étude pour le contrôle de la chiralité du plot nous pouvons noter l'apparition d'un phénomène déjà décrit par la simulation dans ce chapitre : la transition entre un état paroi et un état vortex.

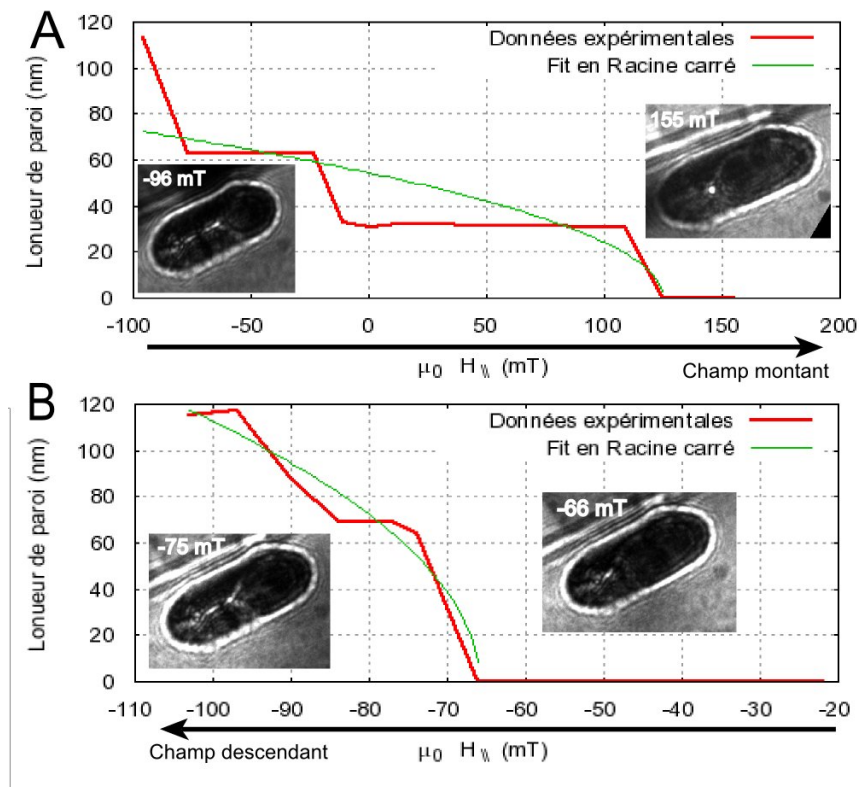
#### d Transition Vortex-Paroi

Nous avons présenté en début de chapitre une étude par simulation de la longueur de paroi. Celle-ci était réalisée en modifiant la longueur d'excès du plot, passant d'une structure rectangle à une structure carré. Il est impossible de jouer sur le même paramètre expérimentalement. Par contre, les études proposées précédemment ont montré que l'application d'un champ magnétique incliné modifiait la longueur des parois de Bloch dans une configuration en Double-Landau.

Nous présentons dans la Fig. IV.26 l'étude sur un plot en configuration Double Landau de la longueur de l'une des deux parois en fonction du champ appliqué. L'évolution de la configuration magnétique de celui-ci est quelque peu singulière. Contrairement à ce qui est décrit dans le paragraphe précédent nous avons ici un état intermédiaire où les parois de Bloch semblent être piégées durant de larges gammes de champ.

Nous avons étudié la longueur de la paroi de gauche en fonction du champ appliqué quand celle-ci se rapproche d'un état vortex. Ceci a lieu pour des champs appliqués négatif et positif. En traçant la taille de la paroi en fonction du champ appliqué (Fig. IV.26) on retrouve un comportement similaire à celui décrit par la simulation sur l'allongement du plot. La transition semble être du second ordre. Ici, nous ne modifions bien évidemment pas la taille du plot par contre, l'énergie Zeeman agissant sur la paroi est modulée par l'application du champ magnétique perpendiculaire et transversal au plot. Si l'origine de la variation de la longueur de paroi n'est pas la même dans les deux cas, l'effet semble être similaire.

Nous avons associé les deux phénomènes (diminution de la taille de la paroi et instabilité énergétique) dans une même analyse nous poussant à voir cette instabilité comme la marque du saut nécessaire pour le passage d'un état paroi à un état vortex. Si la première partie de cette observation



**FIG. IV.26:** Cycle d'aimantation effectue sur toute la gamme d'excitation possible de la lentille objectif. **A** Tracé de la longueur de paroi mesurée en fonction du champ planaire appliqué pour le champ montant. **B** Tracé de la longueur de paroi mesurée en fonction du champ planaire appliqué pour le champ descendant. Les inserts sur les deux graphes correspondent à des clichés de Fresnel pris à  $\Delta f = 50 \mu\text{m}$ . Images obtenues avec le microscope FEI Titan

reste encore à comprendre, la deuxième devrait pouvoir être clairement identifiée à l'aide de l'autre système proposé en début de chapitre : les plots de Cobalt.

Nous avons ainsi entrepris de mesurer la longueur de paroi de façon statistique sur un grand nombre de plots. Cette statistique sera couplée à une analyse de leur structure via la construction de Van den Berg. Si comme le prédisent les simulations, il existe un régime de taille pour lequel il n'existe pas de configuration en paroi mais seulement en vortex, nous devrions pouvoir le déterminer.

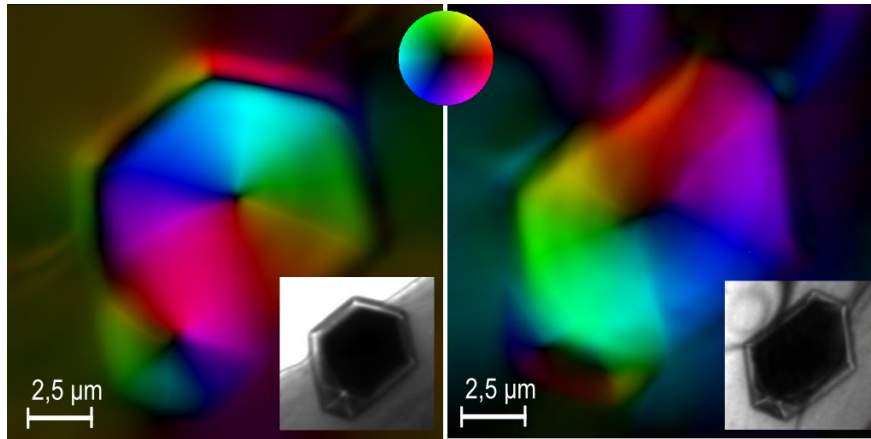
### e Vers le contrôle de la chiralité

Les plots de cobalt présentent une structure non allongée en moyenne et donc de plus haute symétrie. Il existe, malgré les distributions de taille et de géométrie, de nombreux plots présentant une configuration en vortex, deux vortex ou simple paroi (Fig. IV.27). Nous proposons ici une étude préliminaire sur la sélection de la chiralité de ces plots en fonction du champ magnétique appliqué.

#### i Modèle

En introduction à ce chapitre il a été largement discuté de la possibilité de contrôler un degré de liberté magnétique dans une nanostructure. La polarisation d'un vortex peut ainsi être sélectionnée par l'application d'un champ magnétique<sup>141,151</sup>. Le deuxième degré de liberté qui est étudié ici est la chiralité du vortex.





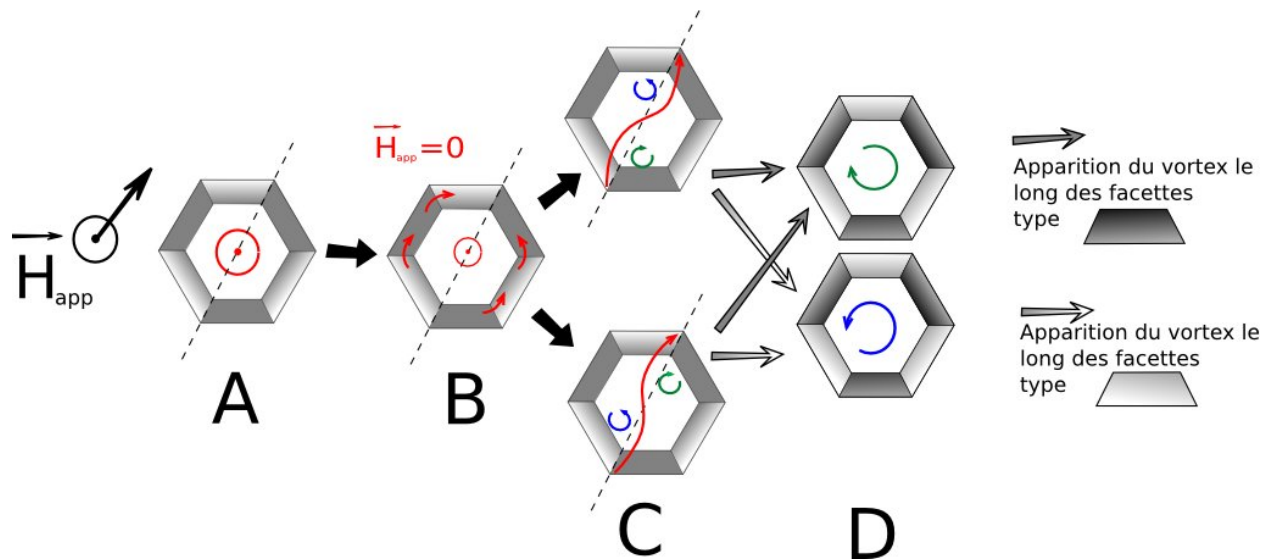
**FIG. IV.27:** Reconstruction par TIE de la distribution magnétique de deux plots de Cobalt. Le plot de gauche présente une configuration en double vortex, celui de droite, une configuration en paroi. Les inserts sont des clichés de Fresnel ( $\Delta f = 50 \mu\text{m}$ ) du même plot. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

Nous avons émis l'hypothèse que cette chiralité pouvait être déterminée à partir de la symétrie trigonale des facettes des plots de Cobalt. En effet, de nombreuses études ont été publiées sur la modification de la symétrie de nanostructures magnétiques induisant une sélection de chiralité par leur histoire magnétique<sup>140,165,166</sup>.

Dans notre cas, la base des plots est un hexagone plus ou moins régulier. Mais la structure cfc confère à ces plots non pas une symétrie d'ordre 6 mais d'ordre 3. Ceci peut être distingué sur l'acquisition AFM présentée en Fig. IV.7, mais est encore plus évident sur le cliché de Fresnel sous-focalisé présenté en Fig. IV.27. L'alternance de contraste entre deux facettes consécutives n'est pas d'origine magnétique (pas uniquement tout du moins) mais bien d'origine topographique. Trois facettes sur six présentent ainsi un double facettage (deux orientations cristallines le long de la facette) alors que les trois autres présentent une orientation cristalline unique. L'asymétrie dans nos nanostructures est donc cristalline et non pas due à un processus de structuration secondaire (lithographie par exemple). Notre problématique est alors de savoir si ce facettage apporte une sélection de chiralité plus prononcée que sur une structure lithographiée.

La Fig. IV.28 présente un modèle possible de sélection de la chiralité, obtenue en fonction de l'inclinaison donnée à l'échantillon lors du retour d'un état saturé perpendiculaire.

Nous partons donc d'un état saturé (Fig. IV.28-A). Le champ appliqué possède une composante perpendiculaire et une composante planaire (dépendant du tilt donné à l'échantillon). Lorsqu'on retire ce champ magnétique (Fig. IV.28-B) l'aimantation planaire apparaît le long des bords des plots pour minimiser l'énergie dipolaire. Ces vecteurs d'aimantation sont à la fois parallèles aux bords et orientés préférentiellement le long de la composante planaire du champ précédemment appliqué. Le plot tendant vers une configuration en état vortex pour minimiser son énergie magnétique, un vortex doit apparaître dans le plot. Celui-ci peut prendre alors naissance en deux endroits du plot relativement à l'état d'aimantation décrit précédemment (Fig. IV.28-C). On note alors que l'endroit où il "entre" dans le plot est directement relié à l'une ou l'autre des facettes (représentées en gris uni ou dégradé sur la Fig. IV.28). Si l'apparition du vortex est déterminée par le type de facette alors la chiralité finale du plot est elle aussi déterminée (Fig. IV.28-D). Nous avons donc une brisure de symétrie dans le plot qui permet de déterminer la chiralité de l'état vortex final au retour de la saturation en utilisant l'inclinaison du plot.



**FIG. IV.28:** Sélection de chiralité en fonction du type de facette où apparaît le vortex. **A.** Le plot hexagonal est soumis à un fort champ magnétique avec une composante planaire et perpendiculaire. **B.** Le champ magnétique est éteint, autorisant l'apparition de petites composantes de l'aimantation le long des bords du plot. **C.** Deux configurations sont possibles une fois la composante perpendiculaire disparue. Les deux possibilités pour l'apparition du vortex sont indiquées en vert et bleu. **D.** Configuration rémanente après apparition du vortex. La chiralité est donnée en bleu ou vert. La configuration finale est reliée à l'un des deux cas en **C**, en fonction de la facette où a nucléé le vortex.

## ii Expérience

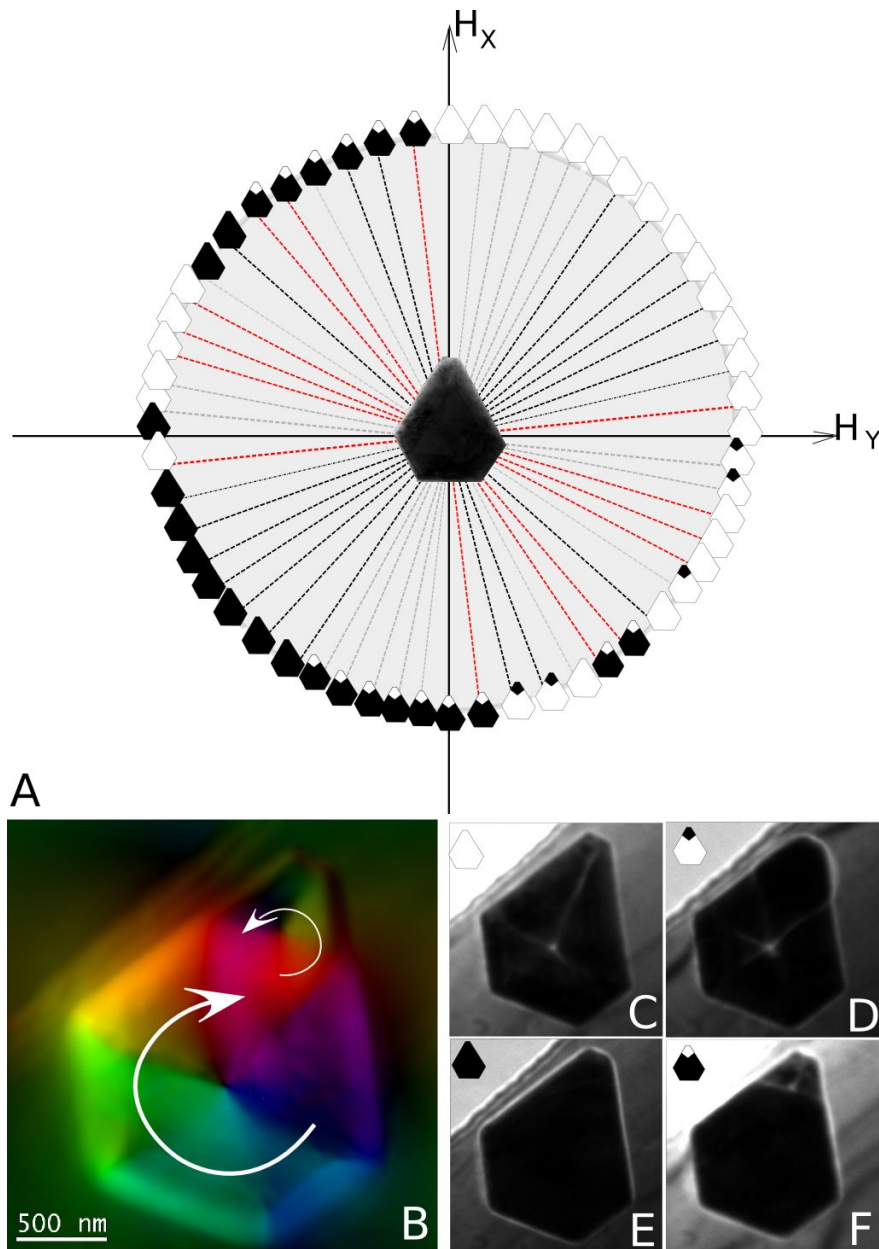
L'expérience est décrite en Fig. IV.29. L'observation des contrastes de Fresnel obtenus pour le plot nous renseigne directement sur la chiralité de celui-ci. En effet, si la défocalisation utilisée est identique, un vortex apparaîtra avec un point blanc ou noir suivant sa chiralité. Deux chiralités opposées sont caractérisées par une variation de contraste pour une même valeur de la défocalisation.

Nous avons réalisé une étude où l'angle d'inclinaison du plot par rapport à la normale est constant. Nous effectuons alors une série d'expériences de désaimantation avec une inclinaison constante mais en modifiant l'azimuth. A chaque azimuth, nous avons allumé la lentille objectif du microscope pendant un bref instant (de l'ordre de la seconde), appliquant alors sur l'échantillon un champ magnétique de l'ordre de 2,5 T. Après chaque saturation, nous avons observé l'état de la chiralité du plot.

Cette étude préliminaire n'a malheureusement pas pu être effectuée sur un plot bien symétrique. L'état magnétique du plot pouvait alors présenter une configuration à deux vortex. Ce plot a donc quatre états de chiralité différente. Soit le plot ne possédait qu'un seul vortex, définissant alors deux états distincts (chiralité "blanche" ou "noire" dans la Fig. IV.29). Soit il en possédait deux, de chiralité opposées (chiralité "blanc-noire" ou "noire-blanc"). Le résultat de cette étude préliminaire montre que pour la moitié des azimuths considérés, deux configurations diamétralement opposées sont presque systématiquement de chiralité opposée. La deuxième moitié de cet astroïde présente par contre des oppositions d'état assez aléatoires.

Nous devons donc réaliser une nouvelle série d'expériences, sur des plots présentant une symétrie plus élevée et en faisant varier l'angle d'inclinaison du champ magnétique. Il semble possible de pouvoir sélectionner la chiralité de ces plots à l'aide de notre modèle. De plus, le sens de la composante perpendiculaire pourrait a priori définir l'état d'aimantation du coeur de vortex.

Un deuxième modèle pourrait être envisagé à partir de l'inclinaison de ces facettes. Prenant deux



**FIG. IV.29:** Sélection de chiralité par saturation du plot en incidence oblique. **A** Astroïde décrivant l'expérience. Les axes correspondent aux axes d'inclinaison du microscope. L'angle par rapport à la normale est gardé constant à  $10^\circ$ . Pour chaque configuration, l'état du plot à la rémanence est représenté par un code couleur explicité dans les images C à E. Les lignes en pointillés qui joignent deux configurations diamétralement opposées suivent le code suivant : noire pour une chiralité opposée, grise pour une chiralité partiellement opposée et rouge pour une chiralité identique. **B** Cartographie magnétique du plot de cobalt, obtenue par la résolution de la TIE. La configuration présentée montre un état avec deux vortex. **C à F** Les quatre configurations magnétiques obtenues pour le plot observées en contrastes de Fresnel. La défocalisation est négative dans les quatre images. *Images obtenues avec le microscope JEOL 3010*

facettes opposées l'une à l'autre dans le plot, on peut faire l'hypothèse qu'elles forment entre elles un angle de  $90^\circ$ . Lors de l'application d'un champ magnétique incliné on va ainsi briser la symétrie du plot avec une facette perpendiculaire au champ appliqué tandis que l'autre lui est parallèle. La première accumule alors de nombreuses charges magnétiques lors du processus d'aimantation. Le retour à la rémanence (et donc la chiralité) est alors gouverné par la position de ces charges. Ce modèle peut alors expliquer le processus de sélection même pour l'application d'un champ planaire.

## f Perspectives

De nouvelles mesures sont en cours pour étudier le phénomène décrit pour la transition du vortex vers la paroi ainsi que pour la sélection de la chiralité. Pour caractériser la transition du second ordre nous avons décidé de réaliser une étude de la distribution des plots. Pour chaque plot présentant un état où une seule chiralité est observée nous voulons mesurer la taille de la paroi (ou noter l'état vortex). La topographie du plot sera alors étudiée avec une construction de Van Den Berg. La comparaison des deux distributions (mesure expérimentale et construction de VDB) devrait nous donner une différence significative sur les longueurs de parois dans les faibles tailles de plots.

Nous avons donc mis en évidence l'intérêt de la Microscopie de Lorentz pour l'étude de nanostructures. Si nous n'avons pas ici mis à profit les techniques de caractérisation quantitatives présentées au chapitre III nous avons présenté des études par l'image uniques, alliant une résolution de l'ordre de la dizaine de nanomètres à la possibilité d'appliquer in-situ des champs magnétiques. Ces champs sont parfaitement contrôlables et de plus peuvent être très importants (de l'ordre du Tesla).

L'étude d'objets magnétiques, et leur contrôle, a notamment été rendue possible par la dynamique de la mesure. Si celle-ci ne peut se comparer avec d'autres méthodes résolues en temps (telles la microscopie Kerr ou le MTXM), elle permet néanmoins de suivre l'évolution des configurations d'objets magnétiques, avec encore une fois, une résolution spatiale à leur échelle.

Les systèmes que nous avons étudiés ont livré des comportements parfois étranges (telle la fluctuation stochastique de la configuration magnétique dans les plots de Fer) mais en grande majorité prévus par les simulations. Dans le cas du retournement de domaine de fermeture de Néel par exemple, la propagation du vortex de surface n'a été rendue possible qu'avec une étude couplée de la simulation et des clichés de Fresnel. Nous pointons ici la complémentarité des deux approches. La première nécessitera toujours une validation expérimentale et la seconde une voie indiquant les mesures à effectuer. Nous avons mis à profit cette complémentarité et démontré les grandes possibilités offertes par la rencontre de la microscopie électronique et la simulation micromagnétique (déjà mise en valeur au chapitre précédent).

Pour finir je dirais que ces études sont loin d'avoir livré tous les secrets nécessaires à leur compréhension. D'un point de vue purement physique, de nombreux phénomènes observés nécessitent encore d'être expliqués. D'un point de vue expérimental il faudra continuer à développer les études couplées de simulations de contraste et d'observation expérimentale, notamment pour les phénomènes de fluctuations.

Enfin, avec l'objectif du développement de la tomographie de champ vectoriel, ces plots semblent être un système idéal pour pouvoir tester la résolution de la technique.

### Conclusions

- Nous avons montré qu'il était possible de manipuler des objets magnétiques.
- Nous avons caractérisé le retournement du domaine de fermeture de Néel d'une paroi de Bloch par la propagation d'un vortex (phénomène décrit par la simulation mais encore jamais observé).
- Nous avons caractérisé une structure double Landau présentant une translation du losange central par l'application d'un champ planaire.
- Nous avons mis en évidence un phénomène de fluctuation entre deux états magnétiques d'énergie équivalente dont la compréhension reste à développer.
- Nous avons mis en évidence une transition du second ordre dans le passage d'un état vortex à un état paroi. Cette transition semble possible à caractériser de manière statistique.
- Nous avons également pu effectuer des expériences préliminaires sur la chiralité d'un vortex avec l'application d'un champ magnétique.

*« Alors que la science,  
et la science seule  
a pu patiemment au fil des siècles  
nous apporter l'horloge pointeuse  
et le parcmètre automatique  
sans lesquels il n'y a pas de bonheur terrestre possible. »<sup>1</sup>*

# Conclusions et Perspectives

La Microscopie de Lorentz et l'holographie électronique sont donc désormais disponibles aux utilisateurs du Laboratoire d'Étude des Matériaux et de Microscopie Avancées. Les trois différentes approches de la cartographie magnétique que sont le DPC, la reconstruction focale via la TIE, et l'holographie électronique ont toutes été implémentées avec succès sur les microscopes du laboratoire (hormis le DPC sur le Titan et l'holographie sur le Jeol 3010). Outre la présence unique de ces trois techniques dans un même lieu, nous avons développé un outil de simulation permettant d'effectuer des comparaisons à la fois qualitatives et quantitatives entre ces trois méthodes.

Toutes ces implémentations ont fait l'objet d'un développement orienté vers le futur utilisateur. Ainsi, si j'ai avant tout utilisé un logiciel de calcul numérique (Scilab) pour les mettre en oeuvre, toutes ont également été développées dans un environnement plus ergonomique. Elles se présentent sous la forme de routines, programmées sous Digital Micrograph<sup>©</sup> (DM). Ce logiciel est le programme de référence pour la microscopie électronique, permettant à la fois le traitement des images et à la fois l'acquisition de celles-ci.

La routine MAP, développée par C. Gatel, permet d'effectuer des reconstructions focales via la TIE, de traiter des acquisitions DPC, ou simplement d'effectuer des corrections d'images. Nous avons également mis en place avec Matthieu Tottet, en stage d'IUT pour deux mois au laboratoire, une nouvelle forme de programmation pour ces routines (utilisation du C++ et de l'environnement DM). Elle a notamment permis de proposer une façon intuitive pour piloter le microscope JEOL 3010. Ce pilotage est destiné à l'application de champs magnétiques ainsi qu'au passage en mode Foucault (et intègre dès à présent la quantification des cartographies en DPC). La distribution de ces diverses routines devra être envisagée.

L'étude de couches minces de Fer-Palladium a mis en évidence leur structure magnétique complexe. La quantification des observations, si elle n'est pas toujours aussi précise qu'une mesure de magnétométrie, ne doit cependant pas cacher la véritable information apportée par la Microscopie Electronique en Transmission : la visualisation de flux magnétiques à l'échelle du nanomètre.

Les études en dynamique avec l'application d'un champ magnétique nous ont notamment permis d'observer des défauts purement magnétiques au sein de ces couches. Les lignes de Bloch verticales ont d'abord été révélées par l'expérience avant de faire l'objet de simulations. Cette étude démontre notamment la complémentarité de la Microscopie de Lorentz avec les simulations micromagnétiques. Celles-ci nous ont par exemple permis de comprendre les contrastes obtenus au début de cette thèse quand leur simple observation ne permettait pas encore de déterminer, même qualitativement, la configuration magnétique qui était sous nos yeux. Pour le cas de ces lignes de Bloch, c'est au contraire en observant des structures magnétiques connues (les parois de Bloch) en Microscopie de Lorentz que nous avons pu mettre en évidence la nécessité de simuler les lignes de Bloch. Le processus d'aimantation de ces couches est en grande partie contrôlé par le mouvement de ces défauts. Notre étude a notamment permis de déterminer leur configuration. Aussi, l'analyse de ce processus peut être envisagé avec toutes les données nécessaires.

L'extension de cette étude portera sur l'analyse des couches de Fer-Platine, présentant une anisotropie encore plus élevée. L'intérêt de cet alliage, par rapport au FePd, réside dans une rémanence proche de 100 %, pouvant ainsi être utilisé directement comme un moyen de stockage de l'information. Notre connaissance du FePd permettra notamment d'aborder son observation avec beaucoup plus de facilité dans l'interprétation des contrastes.

D'un autre côté, l'étude des multicouches Cobalt-Platine, permettra d'étudier par l'image la propagation de parois magnétiques dans des systèmes nanostructurés. Cette propagation doit être étudiée tout d'abord sous l'action d'un champ magnétique avant de passer à des expériences mettant en

oeuvre la propagation de parois assistée par courant électrique.

Les plots auto-assemblés de Fer et de Cobalt ont révélé des comportements originaux. Nous avons mis en évidence la possibilité de contrôler plusieurs degrés de liberté dans ces systèmes. Contrairement à de simple vortex, offrant uniquement deux paramètres contrôlables, ces plots permettent d'envisager un codage de trois bits de données (huit états distincts) dans une seule structure. Ce sont ces divers états et surtout leur sélection qui nous a intéressé ici.

Nous avons démontré que le degré de liberté supplémentaire disponible grâce à la présence d'une paroi de Bloch pouvait être parfaitement contrôlé par l'application d'un champ magnétique. Nous avons de plus mis en évidence la possibilité de contrôler la chiralité de plots de Cobalt de manière reproductible. En associant à ces résultats les études rapportées dans la littérature sur le contrôle de la polarisation de vortex, nous pouvons donc envisager un système dont l'état magnétique contenant trois données est parfaitement manipulable.

D'un point de vue plus fondamental nous avons aussi pu étudier la transition entre l'état de vortex et de paroi magnétique. Les résultats de cette étude ont mis en lumière une transition du second ordre entre les deux états. Ces résultats doivent encore faire l'objet de validations expérimentales. Les fluctuations stochastiques que nous avons observées dans ces plots demeurent un phénomène inexplicé. Il faudra notamment aborder par la simulation ce type d'observation pour espérer comprendre l'origine de cet état bi-stable. Si pour l'instant une activation thermique semble être l'explication de la source de celui-ci, nous ne pouvons conclure sur les mécanismes qui lui donnent naissance.

Les nombreuses collaborations qui ont rythmé ces travaux de thèse montrent que de nombreux systèmes attendent encore de livrer leurs secrets.

Il sera par exemple très intéressant d'étudier en profondeur les couches de Germanium-Manganèse dont la croissance a été réalisée par T. Devillers, M. Jamet et A. Barski au SP2M. Ces semiconducteurs magnétiques présentent une structure en colonne de  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$ . Ce type de matériau est un excellent défi pour permettre de réellement situer la limite de notre technique d'imagerie. En effet, les colonnes de cet alliage présentent un diamètre de 3 nm et pourraient s'organiser selon une configuration antiferromagnétique.

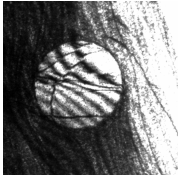
L'étude du couplage entre diverses couches magnétiques (barrières tunnels, réplification de domaines antiferromagnétiques, etc...) doit aussi être bientôt mise en route.

Enfin, toutes les études portant sur le piégeage des parois magnétiques sur les défauts cristallins ont vocation à être réalisées en Microscopie de Lorentz. La sensibilité à la fois structurale et magnétique de cette technique lui confère une particularité unique pour relier configuration magnétique et agencement du cristal.





*« Et n'est-ce pas le triomphe absolu de la science,  
que sur la seule décision  
d'un vieillard californien impuissant  
ou d'un fossile ukrainien gâteux,  
l'homme puisse, en moins d'une seconde,  
faire sauter 40 fois la planète  
sans bouger les oreilles ? »<sup>1</sup>*



## Chapitre X

# Annexes

### Sommaire

A	Définition de quelques constantes très utiles en LTEM . . . . .	144
B	Calcul du Déphasage dû au Potentiel Interne . . . . .	145
C	Cartographie d'épaisseur . . . . .	148
D	Calibrations des Tilt du JEOL 3010 . . . . .	149
E	Le Scattergram . . . . .	150
F	Correction automatique des images . . . . .	152
G	Problèmes de simulation en LTEM . . . . .	156
H	Intérêt d'une approche multislice en LTEM . . . . .	158
I	Holographie "In-Line" . . . . .	159
J	Aimantation planaire sur vue transverse de FePd . . . . .	161
K	Expériences de STXM . . . . .	163

## A Définition de quelques constantes très utiles en LTEM

### Phase MIP

$$\Delta\phi = C_E V_{int} \Delta t$$

Soit par exemple à 200 kV ( $C_E = 0,007288 V^{-1}nm^{-1}$ ), et un potentiel interne de 20V. La relation entre phase et épaisseur est de de : 1 rad pour 6.86nm et à 300 kV on a 1 rad pour 7.66 nm

### Phase Magnétique

Dans la formule de Aharonov et Bohm :

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} \int A_z(x, y, z) dz$$

qu'on peut réduire à :

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} \nabla^{-1} \bar{B} \Delta t$$

où  $\nabla^{-1}$  correspond au gradient (voir aussi Eq. III.4 du Chap. III). On remarque alors

$$\frac{\hbar}{e} = \frac{h}{2\pi e} = \frac{\Phi_0}{\pi}$$

où  $\Phi_0 = \frac{h}{2e}$  est ici le quantum de flux magnétique ( $\Phi_0 = 2,067.10^{-15} V.s$  ou  $T.m^2$ )

Donc notre constante de déphasage magnétique est :  $\frac{\hbar}{e} = 658 T.nm^2.rad^{-1}$

Ce qui permet facilement d'estimer des déphasages à partir d'une aimantation et vice versa...

Par exemple prenons un  $\mu_0 M_S = 1 T$ , une épaisseur de 10 nm, :

$$\Delta\phi = \frac{1}{658} = 15 \text{ mrad par nm}$$

### Phase Totale

À partir des termes de phase :

$$\begin{aligned} \Delta\phi_{magn.} &= \frac{e}{\hbar} A_z \Delta t \\ \Delta\phi_{M.I.P.} &= C_E V_{int} \Delta t \end{aligned}$$

et du rapport MAG sur MIP, on a directement accès au potentiel vecteur au travers d'une constante dépendante de l'échantillon et du microscope :

$$\frac{\Delta\phi_{magn.}}{\Delta\phi_{M.I.P.}} = \frac{e}{\hbar \cdot C_E V_{int}} \nabla^{-1} \bar{B} = \gamma \nabla^{-1} \bar{B}$$

Soit par exemple à 200 kV et un potentiel interne de 20 V, une constante  $\gamma = 0,0104 T^{-1}.m$  Et à 300 kV, on a  $\gamma = 0.0116 T^{-1}.m$ . Donc en termes d'ordre de grandeur, une variation de  $10^{-2}$  par nm dans le rapport de phase équivaut à une induction magnétique intégrée de 1 Tesla.

### Comparaison

$\Delta\phi_{MIP}$	1 rad	$\iff 6,9 \text{ nm}$
$MIP = 20V$	0.15 rad	$\iff 1 \text{ nm}$
$\Delta\phi_{MAG}$	$75 \text{ mrad.nm}^{-1}$	$\iff 1 T$
$\Delta t = 50nm$	$100 \text{ mrad.nm}^{-1}$	$\iff 1.33 T$
$\frac{\Delta\phi_{MAG}}{\Delta\phi_{MIP}}$	$10^{-2}/nm$	$\iff 1 T$

## B Calcul du Déphasage dû au Potentiel Interne

### Définition

Le Potentiel interne, noté généralement  $V_0$ , est défini comme l'ordre 0 de la décomposition de Fourier du potentiel cristallin.

Ce potentiel s'exprime en volt et est compris entre :

$$-30 \text{ V} < V_0 < -5 \text{ V}$$

Ce potentiel conduit à l'indice de réfraction d'un cristal par la formule :  $n = 1 + \frac{eV_0}{2E}$  avec  $e$  la charge de l'électron et  $E$  leur énergie en  $kV$ .

La connaissance de ce potentiel interne (ou MIP pour Mean Inner Potential) permet calculer l'information de déphasage, connaissant l'épaisseur  $\Delta t$  associée :

$$\Delta\Phi_{MIP} = C_E \cdot V_0 \cdot \Delta t$$

où  $C_E$  est une constante dépendant de l'énergie des électrons :

$$C_E = \frac{2\pi e}{\lambda E} \frac{E + E_0}{E + 2E_0}$$

Dans cette formule,  $\lambda$  est la longueur d'onde des électrons,  $e$  leur charge,  $E$  est l'énergie des électrons (en eV),  $E_0$  est leur énergie au repos.

Tension d'accélération (kV)	$C_E$ (en $V^{-1} \cdot \mu m^{-1}$ )
100	9,244
200	7,288
300	6,256
400	6,121

### Calcul

Le calcul théorique de ce potentiel interne s'exprime comme la moyenne du potentiel dans la maille élémentaire  $\Omega$  :

$$V_0 = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \vec{V}(\vec{r}) \cdot d\vec{r}$$

Dans la pratique on peut la calculer en utilisant les facteurs de diffusion atomique<sup>65</sup> :

$$V_0 = \frac{h^2}{2\pi m_0 e \Omega} \sum_j f_j(0)$$

On retrouve la constante de planck  $h$ , la masse de l'électron  $m_0$ , le volume de la maille élémentaire  $\Omega$ , et les facteurs de diffusion atomiques  $f_j$ .

Ces facteurs de diffusion atomique ont été tabulés par Doyle et Turner<sup>167</sup> ou peuvent être déterminés (pour le Silicium uniquement) par la technique CHEF de CBED holographique<sup>168</sup>. Il est aussi très facile de les tirer du logiciel JEMS de P. Stadelman.

Ce facteur est exprimé par l'approximation suivante :

$$f_j(s) = \sum_{k=l}^n a_k e^{-b_k s^2}$$

où les  $a_k, b_k$  sont les facteurs tabulés et  $s = \frac{\sin(\theta)}{\lambda}$ .

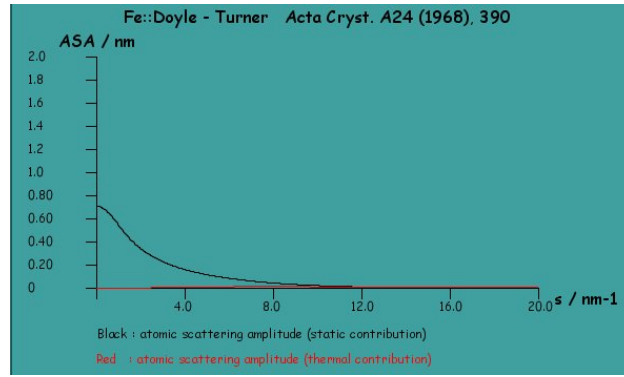


FIG. B-1: Facteur de diffusion atomique calculé dans JEMS

### Exemple de Calcul pour le FePd

La maille élémentaire du FePd dans sa structure ordonnée  $L1_0$  est un parallélépipède ( $a=3,71 \text{ \AA}$ ,  $c=3,85 \text{ \AA}$ ) contenant 2 atomes de Fer et 2 atomes de Palladium.

$$\sum_j f_j(0) = 2f_{Fe}(0) + 2f_{Pd}(0)$$

$$\sum_j f_j(0) = 2 * 7,149 + 2 * 9,273$$

$$\sum_j f_j(0) = 32.844$$

Les facteurs de structure sont déterminés à l'aide de JEMS (Fig. B-1). Le volume de la cellule est quant à lui de :  $\Omega = 55,14 \text{ \AA}^3$

On obtient donc pour le FePd ordonné, un potentiel interne de  $\boxed{28,51 \text{ V}}$

Cette valeur est très supérieure à la valeur tabulée pour le Fer<sup>65</sup>. Nous devons y apporter deux corrections :

- La correction relativiste
- Le "binding" pour prendre en compte les interaction inter-atomiques

**Correction relativiste** Du fait là très grande vitesse des électrons, leur masse ne peut être considérée comme constante :

$$\frac{m}{m_0} = \left[ 1 - \left( \frac{v}{c} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}}$$

Cette correction apporte à la fois une correction sur le calcul du potentiel interne mais aussi sur les facteurs de D-T qui vont se trouver légèrement augmentés.

**Prise en compte du binding** Les liaisons dans le cristal sont associées à une certaine énergie. Donc ce potentiel interne se trouve être légèrement sur-évalué.

Les 2 corrections ne s'annulent pas pour autant. Des valeurs ont été tabulées par Radi prenant en compte ces différentes corrections. Les calculs sont extrêmement lourds et complexes. Ross et Stobbs ont ainsi réalisé une régression qui consiste à prendre le calcul brut à partir des coefficient de D-T et d'appliquer une formule empirique pour retrouver les valeurs déterminées par Radi :

$$\frac{V_0(\text{Radi})}{V_0(D-T)} = 0,0325 \frac{Z}{\Omega} + 0,6775$$

Dans cette formule le  $\frac{Z}{\Omega}$  désigne le numéro atomique moyen par unité de volume (exprimé en  $\text{\AA}^{-3}$ ). De cette manière on remonte aisément à l'approximation du potentiel interne prenant en compte l'énergie de liaison dans le cristal.

On trouve dans notre cas, une valeur pour le  $\text{FePd}_{L10}$  de :  $\frac{Z}{\Omega} = \frac{2 \cdot 26 + 2 \cdot 46}{55,14} = 2,611$  et il vient donc :

$$\boxed{21,45 \text{ V}}$$

### MIP de quelques matériaux

Nous avons donc déterminé plusieurs potentiels internes pour les matériaux que nous avons rencontrés :

Matériau	$V_0$ (non bind.)	$V_0$ (bind.)
$\text{FePd}_{L10}$	28,51	21,45
$\text{FePd}_{desord.}$	29,74	22,67
Pd	-	22,37
Fe	29,33	
Pt	-	32,14
MgO	18,44	17,94
GeMn ( $\phi_{colonn.}$ )	7,91	6,83

## C Cartographie d'épaisseur

La cartographie d'épaisseur dans un TEM permet de remonter à une estimation de l'épaisseur de l'échantillon en analysant l'énergie des électrons. Ceci est un résumé de l'article d'Egerton<sup>126</sup> proposant une manière simple de calculer le libre parcours moyen ( $\lambda_{inel.}$ ) des électrons.

L'épaisseur est reliée à un rapport d'intensité sur 2 images : la première comprend les électrons ayant subi un choc élastique, l'autre la totalité des électrons (élastique et inélastiques). Ces images sont réalisées à l'aide d'un GIF (Gatan Imaging Filter) qui permet de sélectionner les électrons selon leur énergie.

$$\frac{t}{\lambda_{inel.}} = \ln \left( \frac{I_0}{I_{tot}} \right) \quad (.1)$$

Dans cette formule,  $t$  représente l'épaisseur traversée,  $I_0$  est l'intensité de l'image comprenant les électrons élastiques,  $I_{tot}$  est l'intensité de la même image pour la totalité des électrons.

L'image comprenant uniquement les électrons élastique est prise avec un filtrage en "Zero-Loss". Ce filtrage est centré sur le premier pic du spectre de perte d'énergie. Cette acquisition doit être faite avec une fente minimale. Selon la stabilité et la précision du GIF utilisé, elle peut varier de 5 à 10 eV.

Le libre parcours moyen est déterminé à l'aide la formule suivante :

$$\lambda_{inel.} = 106 \cdot F \frac{\frac{E_0}{E_m}}{\ln \left( 2\beta \frac{E_0}{E_m} \right)} \quad (.2)$$

où  $F$  est un facteur sans unité dépendant de l'énergie des électrons,  $E_0$  est l'énergie des électrons en kV,  $\beta$  le demi angle de collection du spectre et  $E_m$  l'énergie chimique dépendant du matériau rencontré.

- $F = \frac{1 + \frac{E_0}{E_m}}{\left(1 + \frac{E_0}{511}\right)^2}$  ( $F$  vaut 0.513 à 300 kV)
- $\beta$  est de l'ordre du mrad (0.5 pour le JEOL 3010)
- $E_m = 7,6 \cdot Z^{0,36}$  où  $Z$  est le numéro atomique de l'élément considéré

Nous avons donc calculé plusieurs de ces libres parcours moyens, pour les différentes espèces que nous avons pu rencontrer durant cette thèse :

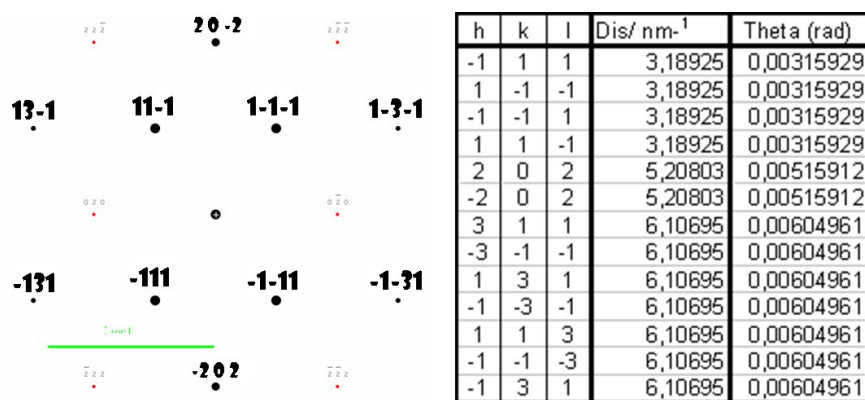
Élément	Energie chimique (en kV)	$\lambda$ (en nm)
Fe ( $Z = 26$ )	24,56	120
Co ( $Z = 27$ )	24,89	120
Pd ( $Z = 46$ )	30,15	102
FePd ( $Z \sim 26$ )	27,05	112
FePd <sub>2</sub> ( $Z \sim 39.3$ )	28,50	107
MgO ( $Z \sim 10$ )	17,41	161

## D Calibrations des Tilt du JEOL 3010

Dans le but de quantifier nos images en DPC, nous avons dû calibrer de manière absolue la valeur du pas de tilt du faisceau sur le microscope JEOL 3010. Pour ce faire nous avons utilisé un échantillon de Silicium  $\langle 110 \rangle$  et nous avons déterminé le nombre d'incrément de tilt à effectuer pour recentrer les spots diffractés au niveau du faisceau transmis.

Le but est donc de se mettre dans les conditions du mode Foucault (à partir du mode LowMag), et d'observer la quantité de tilt à introduire sur le faisceau d'électrons pour parcourir un angle connu, bien supérieur aux déflexions magnétiques que nous avons l'habitude d'observer.

L'échantillon est un cristal de Silicium orienté  $\langle 110 \rangle$ . Nous avons simulé à l'aide de JEMS les angles attendus pour les premières taches de diffraction (Fig. D-2). Les déflectrices utilisées en mode MAG et LowMAG n'étant pas les mêmes nous n'avons pas obtenu la même calibration pour les 2 modes.



**FIG. D-2:** Cliché de diffraction simulé dans JEMS pour le Silicium  $\langle 110 \rangle$ . Le tableau donne les valeurs des angles de diffraction pour les différentes taches que nous avons pu atteindre.

Nous avons donc réalisé la calibration pour quatre longueurs de caméra différentes en mode Mag et trois autres en mode Foucault. Les valeurs présentées dans le tableau suivant sont une moyenne réalisée sur la totalité des taches de diffraction présentées dans le tableau en Fig. D-2.

Longueur de Caméra	Calibration mesurée (en $\mu rad.pas^{-1}$ )
100 cm	6,7
200 cm	7,9
250 cm	7,7
300 cm	7,7
LM 1	0,34
LM 2	0,35
LM 3	0,35

La longueur de caméra que nous obtenons lors du passage en mode Foucault n'est pas calibrée. Néanmoins nous pouvons l'estimer à plusieurs mètres. La calibration que nous prendrons donc dans nos mesures est de :

$$\boxed{0,3 \mu rad \text{ par pas de tilt effectué}}$$

Lors de ces calibrations nous avons noté que le faisceau transmis n'était pas purement ponctuel. Il s'étale sur un disque ayant un diamètre de l'ordre de  $3 \mu rad$ .



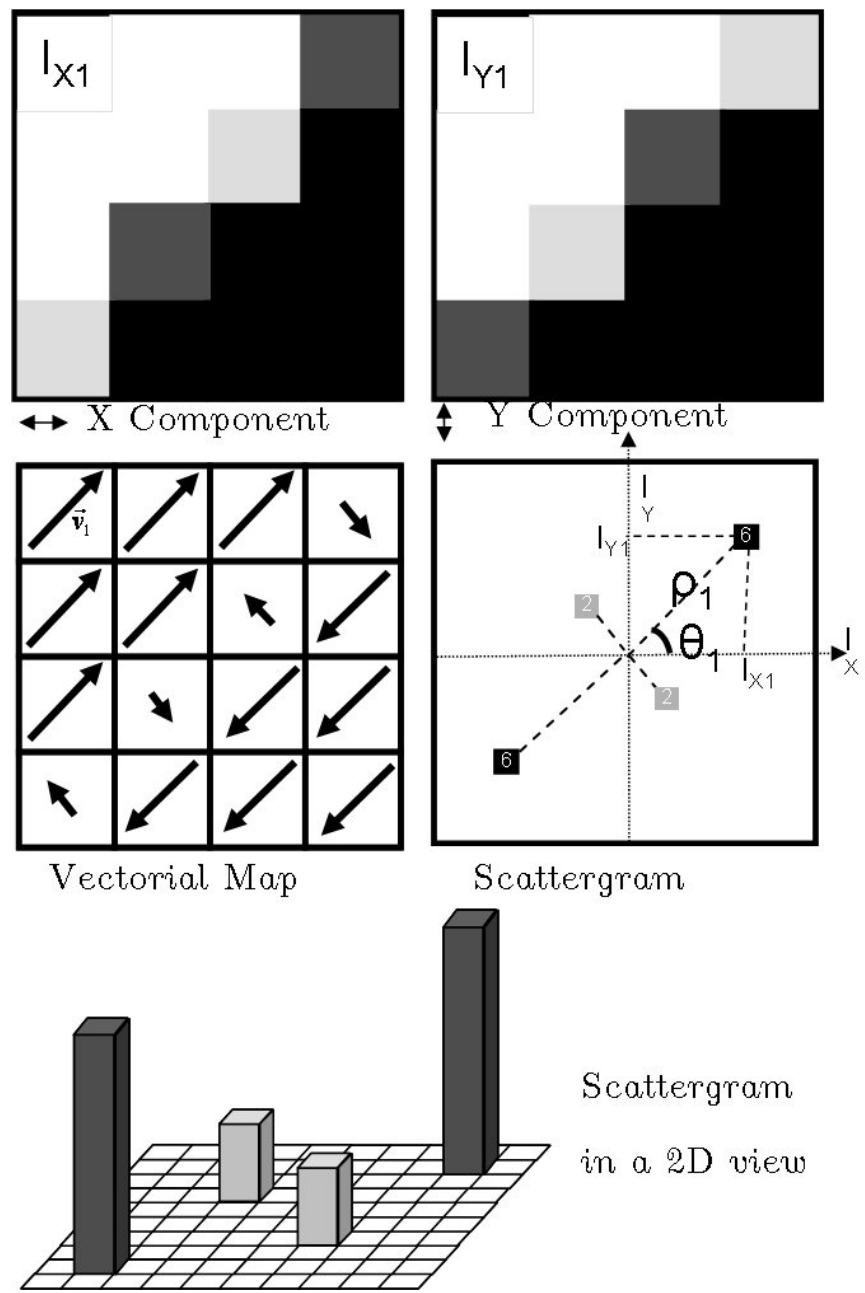
## E Le Scattergram

Le scattergram est un histogramme à 2 dimensions, représentant la distribution d'un champ vectoriel.

Comme le présente la Fig. E-3, le Scattergram propose une visualisation de la distribution de vecteurs pour un champ vectoriel (champ magnétique ou électrique par exemple) donné. A partir d'une cartographie vectorielle (2 images représentant les 2 composantes). Nous présentons ici l'exemple d'une cross-tie, acquise sur une image de 16 pixels (Fig. E-3 images du haut). Cette cartographie peut être aussi représentée sous une forme vectorielle avec une seule image (Fig. E-3 image au milieu à gauche) où chaque vecteur est défini par son module et son angle. Le remplissage du Scattergram se réalise comme expliqué sur la Fig. E-3, image du milieu à droite :

Chaque pixel dans le scattergram représente un module et un argument de vecteur, le module nul étant le centre du Scattergram. Chacun de ses pixels représente alors le nombre d'occurrence du vecteur considéré dans la cartographie. Plus un vecteur apparaît souvent dans la cartographie, plus la valeur du pixel correspondant dans le scattergram sera importante. Les coordonnées d'un pixel dans le scattergram peuvent aussi être interprétées en termes de niveau de couleur dans les 2 images des composantes. Au final, la somme des valeurs dans le scattergram est le nombre de pixels des images initiales. La taille du scattergram est en général fixée à 1024 x 1024 pixel, l'échelle (taille des pixels) étant calculée en fonction du plus grand vecteur trouvé dans la cartographie.

Ce scattergram peut, dans le cas d'une cartographie magnétique, être assimilé à ce que l'on observerait dans le plan focal de lentille objectif. En effet, le centre du scattergram représente alors le faisceau transmis, et les valeurs l'entourant correspondent aux déflexions magnétique.



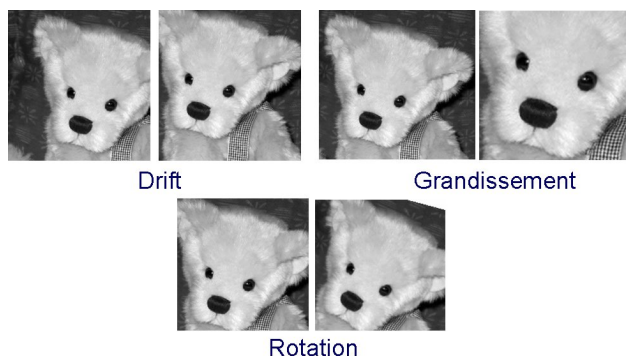
**FIG. E-3:** Exemple de construction d'un scattergram pour une cartographie vectorielle sur une Cross-Tie. Les images sont de 16 pixels. Les 2 premières images montrent les composantes de l'aimantation. L'image au milieu à gauche est la représentation vectorielle de la même information. L'image de droite est le scattergram représenté en rapport avec les annotations sur l'image précédente. L'image du bas est une visualisation en 3 dimensions du scattergram, montrant la défintion initiale d'histogramme.

## F Correction automatique des images

Pour pouvoir sommer deux images entre elles, il faut les réaligner. L'image résultante présente alors dans chacun de ses pixel la somme réelle des deux informations issues du même pixel. Cette correction a dû être mise en place lors du traitement des données de nos acquisitions DPC. En effet cette correction ne peut être effectuée manuellement du fait du nombre important d'images dans chaque série (entre 20 et 50 images).\*

### Corrections à apporter

Nous allons considérer uniquement des corrections du premier ordre. Les variations entre deux images peuvent être séparées en trois type, présentées sur la Fig. F-4.



**FIG. F-4:** Présentation des trois variations observées entre deux images : drift, rotation et grandissement

**Le drift** caractérisé par un vecteur translation entre les 2 images

**La rotation** caractérisée par un angle et un centre de rotation

**Le grandissement** caractérisé par une homothétie comprenant un facteur de grandissement et un centre de transformation

Toutes ces transformations sont déterminées par l'étude de la fonction de cross-corrélation entre les deux images. Cette fonction s'exprime à 1 dimension par la formule :

$$f * g(x) = \int_{-\infty}^{\infty} f(t)g(x - t)dt$$

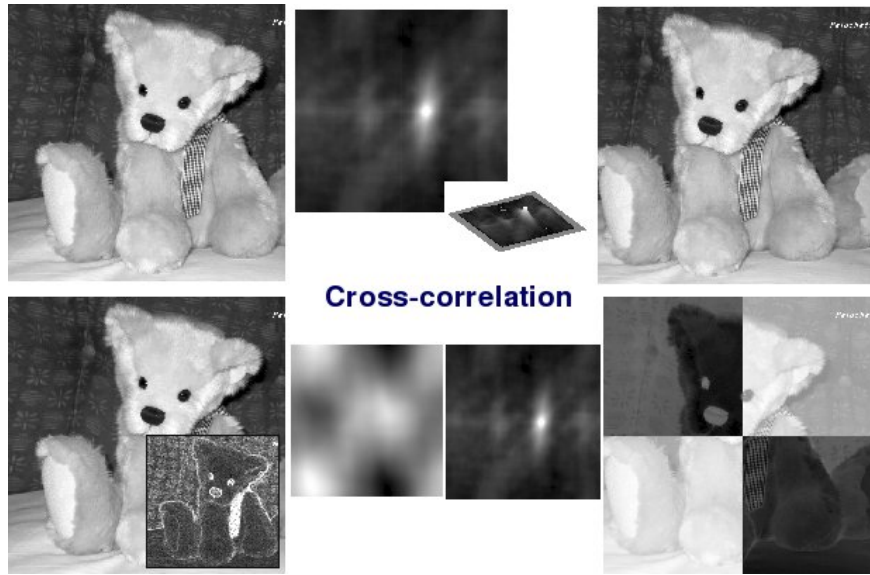
Ce calcul, effectué en deux dimensions sur deux images, produit une nouvelle image, caractéristique de la ressemblance entre les images originales.

### Correction du drift

La cross-corrélation entre deux images décalées d'un vecteur de translation  $\vec{u}$  produit une image présentant un pic d'intensité. Ce pic est décalé du centre de l'image du même vecteur  $\vec{u}$  (Fig. F-5).

La détermination de ce vecteur est réalisée en détectant la position du maximum d'intensité. Pour obtenir une précision sub-pixel cette détection est réalisée en effectuant un ajustement du profil d'intensité. De plus, pour augmenter la précision de la mesure, cette détection est réalisée sur plusieurs parties de l'image :

\*Cette annexe est issue d'une présentation que j'ai donnée au GUMP (Groupement des Utilisateurs des Microscopes Philips), en novembre 2006 à Grenoble.



**FIG. F-5:** Présentation de la correction de drift avec la cross-correlation. La première ligne d'images correspond à la correction simple sur 2 images présentant les mêmes contrastes (les 2 images sont présentées à droite et à gauche). La cross-correlation est présentée au centre, avec une représentation en 2 et 3 dimensions. La deuxième ligne présente la correction effectuée pour deux images présentant des contrastes différents (images de droite et de gauche). L'insert dans la figure de gauche montre le résultat d'une détection de contour pour un filtre de Sobel de l'image. Les deux cross-correlations au centre sont calculées avec et sans la détection de contour.

- Une détection est réalisée sur chaque quart de l'image
- Une détection est réalisée sur le centre de l'image (la moitié de l'image, centrée sur celle-ci)
- Une détection est réalisée sur l'image en entier.

On prend ensuite le mode (la valeur la plus répétée) des ces 6 valeurs, en retirant les valeurs aberrantes (on fixe une limite de détection, considérant que la translation ne peut excéder un certain maximum).

La correction de l'image est effectuée dans l'espace réciproque, pour conserver la résolution sub-pixel :

$$f(x - a) = F^{-1} [e^{-j\omega a} F \{f(x)\}]$$

. On effectue la découpe des images une fois toute la série corrigée.

### Correction de la rotation et du grandissement

La correction de la rotation et du grandissement n'est pas aussi aisée que la correction du drift. On peut décrire simplement la transformation entre deux images où un drift est introduit par :

$$I_B(x, y) = I_A(x + \Delta x, y + \Delta y)$$

On corrige ce drift  $(\Delta x, \Delta y)$  dans l'espace réciproque :

$$\hat{I}_B(\omega_x, \omega_y) = \hat{I}_A(\omega_x, \omega_y) \cdot e^{i(\omega_x \Delta x + \omega_y \Delta y)}$$

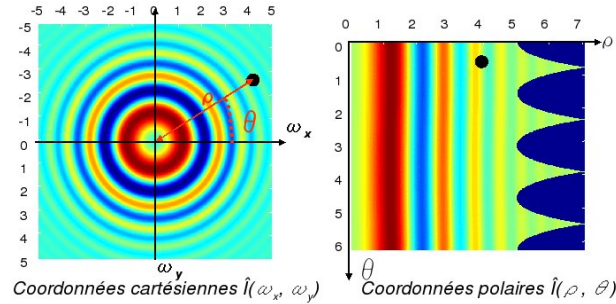
où  $\hat{I}$  dénote l'intensité de l'image exprimé dans l'espace de Fourier. L'introduction d'une rotation  $\theta_0$  et d'un facteur de grandissement  $s$  dans l'image B rend l'expression dans l'espace réel beaucoup plus complexe :

$$I_B(x, y) = I_A(s \cdot (x \cdot \cos \theta_0 + y \cdot \sin \theta_0), s \cdot (-x \cdot \sin \theta_0 + y \cdot \cos \theta_0))$$

Le passage en coordonnées polaires  $I_B(\rho, \theta)$  permet de traiter la variation de grandissement et de rotation. Sur la transformée de Fourier de l'expression précédente ce changement de coordonnées conduit à :

$$\hat{I}_B(\rho, \theta) = s^{-2} \cdot \hat{I}_A\left(\frac{\rho}{s}, \theta + \theta_0\right)$$

On observe ainsi que dans cette expression, la rotation dans ce type de coordonnée est réduite à une simple translation que l'on corrige alors comme le drift décrit à la section précédente.



**FIG. F-6:** Illustration du passage en coordonnées polaires pour une image représentant une fonction de transfert d'un microscope électronique

Le grandissement est lui décrit par une translation, en passant en coordonnées logarithmiques sur la coordonnée  $\rho$ . On a donc une détermination directe des deux paramètres de grandissement et de rotation en passant nos images en coordonnées *semi-log polaires* (Fig. F-6) :

$$\hat{I}_B(\ln \rho, \theta) = s^{-2} \cdot \hat{I}_A(\ln \rho - \ln s, \theta + \theta_0)$$

La correction est alors effectuée par l'étude de la cross-corrélation entre ces deux images. Mais le passage en coordonnées polaires n'est pas si simple.

### Passage en coordonnées Polaires

Ce passage est décrit dans les travaux de Averbuch<sup>169</sup>. Il nécessite de nombreux ré-échantillonnages de l'image qui sont décrits dans les figures suivantes.

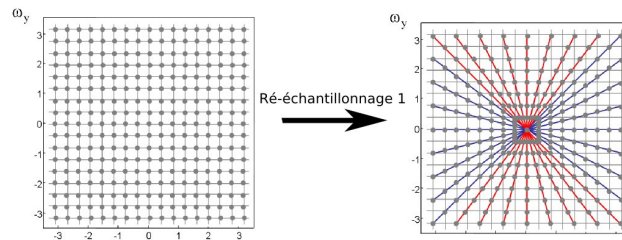
Nous devons effectuer trois ré-échantillonnages successifs de l'image :

#### 1<sup>er</sup> ré-échantillonnage

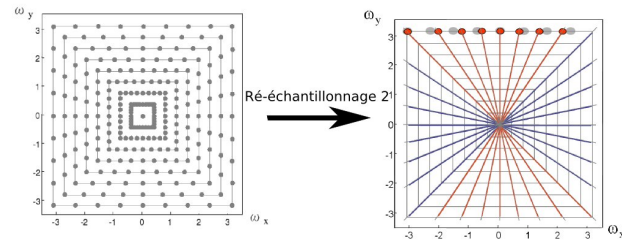
Le 1<sup>er</sup> ré-échantillonnage permet tout d'abord d'obtenir une structure de l'image centrifuge, qu'on pourra nommer pseudo-polaire. Pour ce faire, on divise ce ré-échantillonnage en deux processus distincts : lignes puis colonnes (Fig. F-7). Le ré-échantillonnage permet alors d'obtenir le même nombre de points d'échantillonnage pour différentes lignes issues du centre de l'image. Ce ré-échantillonnage est en fait un sur-échantillonnage des données existantes, notamment au centre de l'image.

#### 2<sup>eme</sup> ré-échantillonnage

On va maintenant passer des coordonnées pseudo-polaires à des coordonnées réellement polaires. Le but est ici d'obtenir un pas d'angle constant (Fig. F-8) entre les lignes d'échantillonnage définies à l'étape précédente. Ceci est réalisé en ré-échantillonnant une nouvelle fois les lignes et les colonnes mais cette fois-ci en gardant le même nombre de noeuds dans l'image.



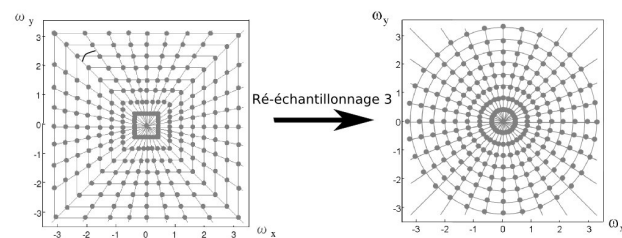
**FIG. F-7:** Procédé pour le premier ré-échantillonnage. Ce ré-échantillonnage est d'abord effectué sur les lignes (en rouge) sur la moitié de l'image, puis sur les colonnes (en bleu) dans la deuxième partie de l'image.



**FIG. F-8:** Procédé pour le deuxième ré-échantillonnage. Ce ré-échantillonnage est d'abord effectué sur les lignes (en rouge) sur la moitié de l'image, puis sur les colonnes (en bleu) dans la deuxième partie de l'image. Il permet d'obtenir un pas d'angle constant entre chaque ligne d'échantillonnage.

### 3<sup>eme</sup> ré-échantillonnage

Le but est ici d'obtenir un pas constant d'échantillonnage par rapport au centre de l'image (Fig. F-9). Ceci est réalisé en ré-échantillonnant les lignes issues du centre de l'image, en conservant le nombre de noeuds le long de ces lignes.



**FIG. F-9:** Procédé pour le troisième ré-échantillonnage. Ce ré-échantillonnage est effectué sur les lignes issues du centre de l'image. Il permet d'obtenir un pas constant entre chaque point de ces lignes.

### Conclusion

Ce type de correction permet donc de déterminer les valeurs de l'angle de rotation et du facteur de grandissement. Par contre le centre de ces transformations n'est pas forcément aligné sur le milieu des images. Aussi il est peu utile de déterminer ces facteurs si on ne peut déterminer l'endroit à partir duquel les appliquer. Une revue bibliographique et une étude doivent donc encore être réalisées pour remédier à ce problème. Ce programme est néanmoins utilisable en supposant que ces centres de transformation sont très proches du centre de l'image, et nous a permis notamment de recalibrer toutes les images acquises lors de processus d'aimantation.

## G Problèmes de simulation en LTEM

Nous revenons ici sur la simulation de clichés en Microscopie de Lorentz. Un problème nous est apparu lors de la prise en compte de la convergence du faisceau électronique.

### Presentation du probleme

Si dans une simulation de cliché nous ne prenons en compte que la fonction de transfert du microscope, défini par  $\chi(\vec{q})$  dans ce manuscrit, nous n'allons modifier que la phase de l'onde électronique. Dans ce cas, l'hypothèse est faite que le faisceau possède une cohérence spatiale totale. On observera alors au niveau des contrastes de Fresnel magnétiques ou topographiques, des franges d'interférence limitées simplement par l'étalement des fréquences spatiales dans l'image.

La littérature décrit la prise en compte de ce phénomène par l'introduction dans la fonction de transfert de deux facteurs d'amortissement (appelées fonctions enveloppes). Ceux-ci décrivent d'une part les aberrations chromatiques dues aux diverses instabilités du système (haute tension, courant des lentilles...) et d'autre part la cohérence de la source.

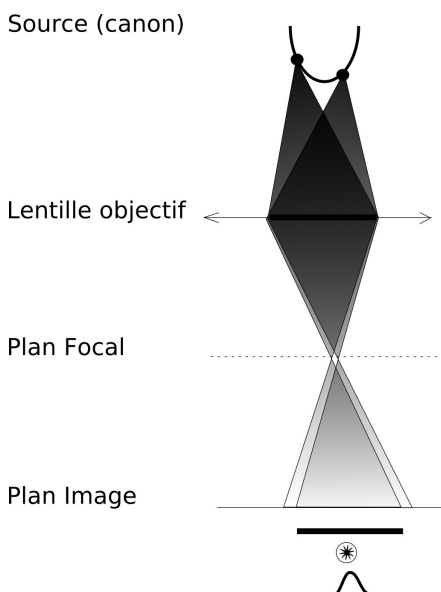
Cette description a été longuement discutée pour l'étude des clichés en Haute résolution<sup>66,170</sup>. Leur méthode de prise en compte a alors été ensuite transférée aux simulations en microscopie de Lorentz<sup>59</sup>. Pourtant cette description, du moment qu'on l'intègre à la fonction de transfert présente une très forte approximation.

L'effet de défaut de cohérence spatiale sur la formation d'une image peut être représenté par 2 points différents de la source émettant chacun leur front d'onde, incohérents entre eux (leur phase est différente). L'effet dans le plan image peut être assimilé à une somme incohérente de plusieurs images (dans la représentation nous avons choisi de les décaler l'une par rapport à l'autre pour marquer ce déphasage). L'idée est alors de convoluer l'image obtenue avec une gaussienne représentant la forme de notre source d'électron. Cette convolution étant effectuée dans le plan image on obtient la formule :

$$I(r) = |A(r)e^{i\Phi}|^2 \otimes e^{-\alpha r^2}$$

qui décrit la formation de l'image que nous avons abordé dans ce manuscrit convolué avec terme représentant la forme de la source. Dans ce cas  $\alpha$  est un terme qui décrit la convergence et la cohérence de la source (fonction de  $\lambda$ , de  $\theta_c$  dans ce manuscrit). Dans ce cas et dans ce cas uniquement, les différentes contributions à l'image ne sont pas cohérentes entre elles, la somme des images ayant lieu sur des figures d'intensité.

Si on regarde maintenant le formalisme que nous avons utilisé pour présenter nos simulations, ce



**FIG. G-10:** Schéma de la colonne optique montrant les trajet de deux ondes issues de 2 points différents de la source.

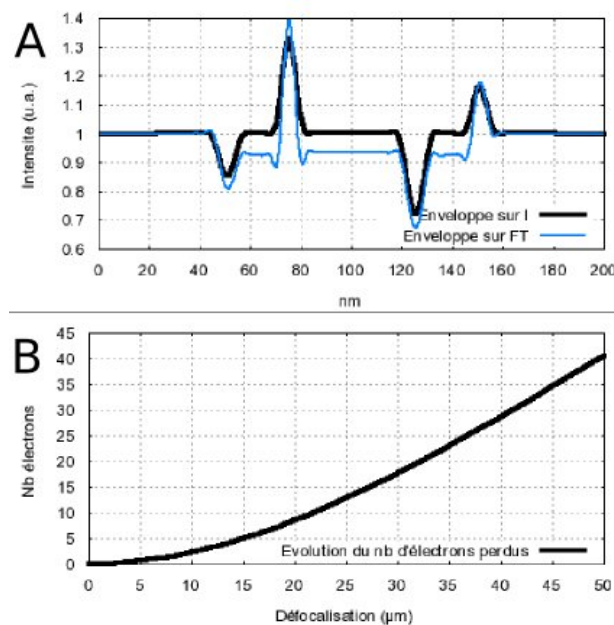
terme décrivant la cohérence-convergence de la source est placé dans le terme de la fonction de Transfert et a donc un effet sur l'onde avant la formation de l'image :

$$I(r) = |A(r)e^{i\Phi} \otimes e^{-\alpha r^2}|^2$$

Dans ce cas, la contribution au contraste est faite d'une somme d'images décrivant effectivement la forme de la source, mais supposant que toutes ces contributions sont cohérentes entre elles.

### Quelques calculs

Nous comparons ici le calcul de contraste obtenu avec les deux approches pour notre système modèle présenté au Chap. II (Fig. G-11). Le résultat obtenu est bien différent, notamment en observant notre profil d'intensité.



**FIG. G-11:** Comparaison de deux méthode de simulation de profil d'intensité en microscopiede Lorentz. **A.** La première (bleue) considère l'effet de la taille de la source au niveau de la fonction de Transfert, la deuxième (noire) au niveau de l'intensité. **B.** Evolution du nombre d'électrons "perdus" dans l'approche utilisant la fonction de Transfert.

Si on somme le profil d'intensité obtenue pour l'approche intégrant la taille de la source dans la fonction de Transfert, on obtient une valeur de 254,3. Cette valeur est à comparer à l'amplitude de l'onde que nous avons en entrée : amplitude de 1 pour toute l'image. On a donc, avec cette approche "perdu" plus de 1 électron (sur le profil de notre image de 256 pixel, on attend donc 256) entre notre onde initiale et notre onde résultante... Ce même calcul effectué sur la méthode appliquant cette enveloppe sur les profil d'intensité directement, donne la valeur attendue de 256.

La deuxième approche semble donc plus correcte d'un point de vue physique.

Cette discussion reste ouverte.



## H Intérêt d'une approche multislice en LTEM

Nous revenons ici sur la simulation de clichés en Microscopie de Lorentz. La méthode que nous avons employé de prime abord est d'intégrer, comme décrit par Aharonov-Bohm, toutes les composantes de l'induction magnétique perpendiculaires au trajet des électrons pour définir un objet de phase pure, sans épaisseur.

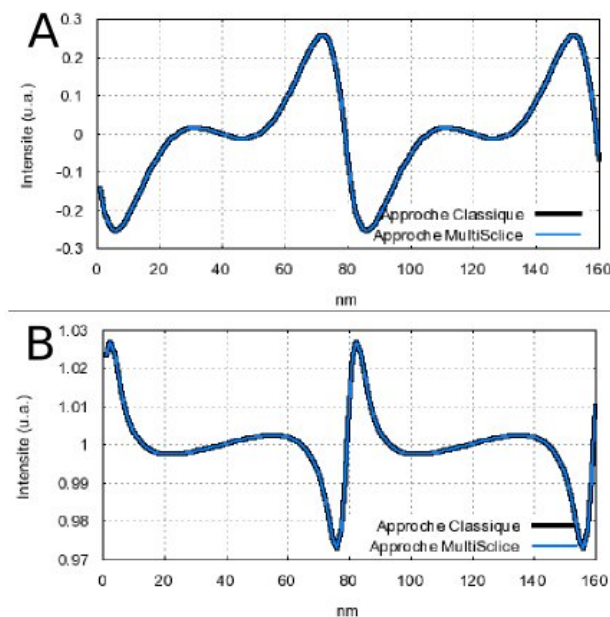
Il est pourtant courant en simulation de cliché de microscopie électronique d'avoir recours à une méthode de simulations en Multislice. Cette méthode consiste à considérer l'échantillon comme une succession de tranches fines qui vont modifier l'onde électronique l'une après l'autre.

Comme présenté dans ce manuscrit nous étions a priori confiant dans cette méthode par une évaluation simple de l'angle de déflexion et le décalage induit après avoir traversé l'épaisseur magnétique correspondante. De plus l'équation donnée par Aharonov et Bohm pour le calcul de ce déphasage (Eq. II.7) n'est théoriquement valable que pour un objet de phase sans épaisseur.

Néanmoins, et pour se persuader de la validité de cette hypothèse, nous avons mis en place une approche multislice pour la simulation de nos clichés. Ainsi, au lieu d'associer l'objet à un pur objet de phase, d'épaisseur négligeable, produisant un déphasage, nous considérons plusieurs tranches de l'échantillon produisant chacune un petit déphasage. L'onde se propage entre chaque plan à l'aide d'un propagateur de Fresnel (celui utilisé pour la formation des contrastes dans la fonction de Transfert).

On a donc, pour le cas de la simulation de contrastes produits par la couche de FePd-FePd<sub>2</sub>, une succession de 64 couches de 1 nm chacune. Le procédé utilisé est donc le calcul du déphasage correspondant à la couche puis une propagation de l'onde sur une distance de 1 nm. Pour chaque couche on ajoute le déphasage à l'onde incidente sur cette couche puis on propage l'onde jusqu'à la couche suivante. Le résultat est présenté en Fig. H-12.

Le déphasage calculé avec les deux méthodes est strictement identique. Notre hypothèse est donc validée. Néanmoins un calcul devrait être réalisé sur les simulation de plots de Fer pour observer cet effet du multislice sur une épaisseur plus importante (100 nm dans le cas des plots).



**FIG. H-12:** Comparaison du calcul effectué en considérant le déphasage d'un objet d'épaisseur négligeable et une approche multislice. **A.** Effet sur la phase. **B.** Effet sur l'intensité.

## I Holographie "In-Line"

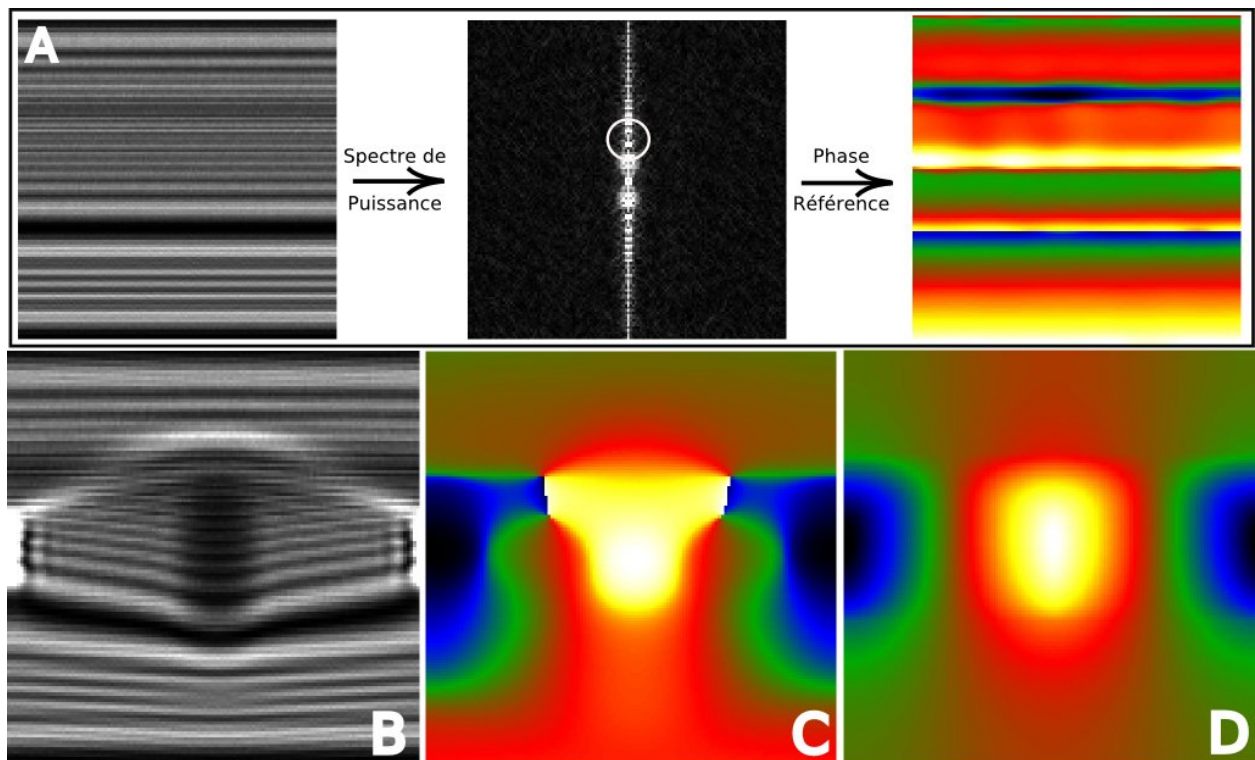
Nous avons envisagé une reconstruction par la simulation d'holographie purement in-line. Derrière ce terme de purement In-line il faut comprendre que les franges d'interférence ne sont pas produites par un birprisme mais par l'échantillon lui-même.

Le détail des clichés expérimentaux est disponible sur la Fig. III.17. Nous allons ici rester dans le domaine d'une analyse par la simulation.

### Présentation du système d'étude

Nous avons donc simulé le même système que présenté au Chapitre III. Les données magnétiques sont issues de la simulation micromagnétique, et les données de potentiel interne ont été idéalisées à partir des résultats obtenus par Holographie out-of-axis sur ces systèmes. Les clichés de Fresnel sont alors simulés à l'aide de la somme de ces deux contributions, ou alors avec la composante MIP seule.

L'approche par la simulation nous permet de définir aisément une référence en retirant la contribution magnétique, et ainsi d'obtenir les contrastes de Fresnel purement topographiques et chimiques (Fig. I-13-A3). Ceci peut être plus difficile à réaliser expérimentalement (saturation de l'échantillon par exemple, mais dans notre cas, la saturation planaire n'intervient que pour 2 Tesla).



**FIG. I-13:** **A** Reconstruction de l'information de phase pour la structure de la lame mince. Le procédé est décrit sur les 3 images par le cliché de Fresnel ( $\Delta f = 50 \mu m$ ), à partir duquel est calculé le spectre de puissance. La reconstruction est réalisée comme en holographie, en sélectionnant une fréquence spatiale - ici  $q_y = 0.05 \text{ nm}^{-1}$  et en masquant le reste du spectre de puissance (la rayon du masque utilisé est :  $0,5 \text{ nm}^{-1}$ ) **B** Cliché de Fresnel simulé (même défocalisation) contenant l'information magnétique et structurale. **C** Phase reconstruite à partir du cliché (B) à laquelle est soustraite la phase référence (A3). **D** Phase magnétique d'origine, utilisée pour la simulation.

## Etude préliminaire par la simulation

La Fig. I-13 présente une première approche de cette méthode, appliqué à ce système. Le principe est de simuler deux clichés de Fresnel, à forte défocalisation, avec et sans l'information magnétique. Le second nous permet de calculer un spectre de puissance, représentant les différentes fréquences spatiales des franges dues aux interfaces et à l'épaisseur de la lame mince. La sélection d'une partie de ces fréquences permet de remonter à une phase référence, représentant l'information portée par la nature de l'empilement de lame (on choisit le pic de plus grande intensité dans le spectre de puissance). Le même calcul, effectué sur le cliché contenant l'information magnétique, permet alors de remonter à une information purement magnétique (en soustrayant l'information de phase structurale).

## Conclusion

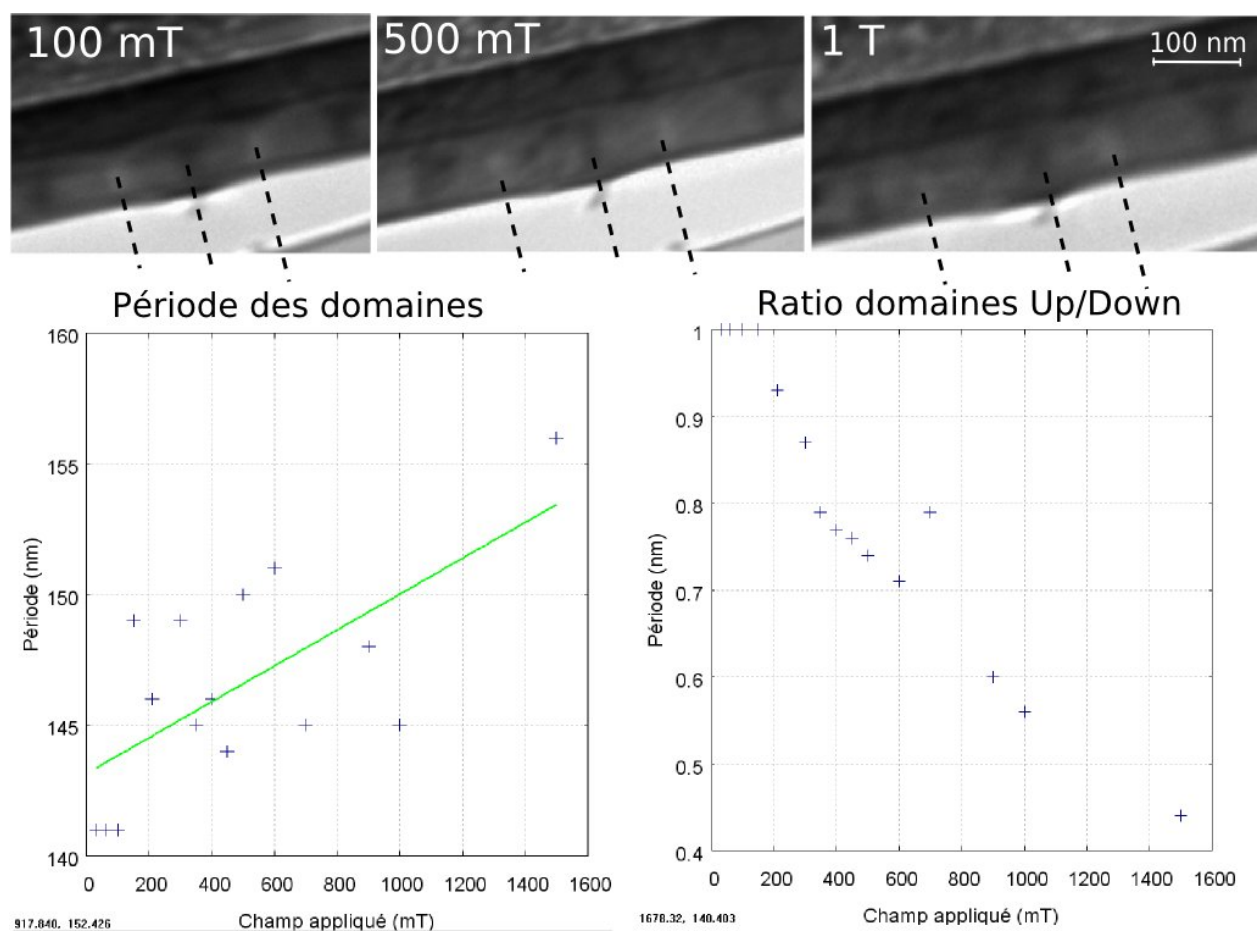
Ce résultat préliminaire permet d'envisager une reconstruction simple de l'information magnétique, uniquement à partir de clichés de Fresnel. Il faudra par la suite affiner cette reconstruction. Nous nous centrons dans ce calcul, uniquement sur une fréquence spatiale, alors que les franges de Fresnel présentent plusieurs fréquences. Celles-ci présentent des fréquences spatiales dépendant à la fois des différentes interfaces et à la fois de la fonction de transfert du microscope (cette fréquence augmente quand on s'éloigne de l'interface). Il faudra donc développer une méthode de reconstruction basée sur la fonction de transfert du microscope, déterminée par la valeur de la défocalisation (seul paramètre jouant réellement dans notre cas sur cette fonction de Transfert, au vu des larges défocalisations utilisées)

## J Aimantation planaire sur vue transverse de FePd

Nous avons aussi mené des études in-situ sur l'échantillon en vue transverse de FePd présenté au Chap. III. Le résultat de cette étude nécessite notamment de nombreuses expériences complémentaires, c'est pourquoi je n'ai pas voulu les intégrer au manuscrit. Néanmoins, je reporte ici les résultats obtenus.

Le champ magnétique est ici orienté dans le plan de la couche, parallèlement aux zones d'aimantation situées sous les domaines magnétiques. Nous avons réalisé cette étude sur le JEOL 3010, pour avoir une gamme de champ suffisante.

L'étude fait apparaître clairement que la structure en domaine est modifiée par l'action du champ magnétique. Comme on peut l'observer sur la Fig J-14, les contrastes de Fresnel, dans ce cas relatifs à la position des parois, bougent le long de la couche.



**FIG. J-14:** Mesure sous champ de la période des domaines et du ratio de tailles des domaines "Up" sur "Down". Les images montrent les clichés expérimentaux utilisés pour les différentes mesures.

Nous avons analysé ces variations en termes de période et de ratio (donc a priori de l'aimantation de la couche). Ces résultats sont reportés en Fig J-14. On voit que la période est légèrement modifiée. Le ratio varie aussi, mais de façon plus prononcée (on passe en dessous de 0,5 pour 1 T). Nous avons d'abord proposé que cette augmentation était uniquement due à l'action d'une composante du champ magnétique perpendiculaire à l'échantillon. Cette composante serait due à une inclinaison de l'échantillon. En fait, même si aucun tilt n'est donné à l'échantillon dans le microscope, celui-ci, lors de la procédure de collage sur la rondelle TEM, peut être légèrement désorienté. Cette désorien-

tation peut être compensée avec une inclinaison de quelque degrés de l'échantillon dans la colonne du microscope.

Or, d'après nos observations, la variation est conséquente et, pour 1 Tesla, le ratio tombe à 0.5. D'après les cycles d'hystérésis, une telle configuration (on est alors à 33 % de la saturation) intervient, pour un champ appliqué perpendiculairement au film, à 300 *mT*. Ceci impliquerait alors un tilt de l'échantillon d'au moins 20°. Cette valeur n'est pas cohérente avec un axe de zone qui se situe dans une gamme de tilts de l'ordre de quelques degrés de la position initiale. Il nous est impossible de réaliser cette étude dans l'axe de zone, car les contrastes dus aux effet dynamiques nous cachent les contrastes de Fresnel.

Nous avons donc tenté de simuler cet effet à l'aide de GL-FFT. Le résultat n'a pas donné de résultats qui pourrait expliquer ce phénomène. Ce point reste donc à éclaircir lors de prochaines observations. Il pourrait s'agir d'une interaction entre les parois magnétiques.

## K Expériences de STXM

Nous avons pu effectuer des expériences de STXM (Scanning Transmission X-Ray Microscopy) au sein du Swiss Light Source (SLS) durant les derniers mois de cette thèse. Ces expériences ont été menées avec Olivier Fruchart (I. Néel), Rachid Belkhou (Soleil) et suivies par Jörg Raabe (SLS). Cette brève annexe a pour but de présenter les résultats de ces expérimentations qui ont été réalisées sur les mêmes objets (plots de Fer) que ceux utilisés en LTEM.

### Premières observations

#### Echantillons

Les échantillons utilisés pour une expérience STXM sont identiques à ceux utilisés pour une expérience TEM. Néanmoins, la gamme des épaisseurs accessibles en TEM semble ici réduite pour obtenir un signal dichroïque. Si nous avons obtenus de très bons résultats sur notre échantillon en TEM (Chapitre IV), les résultats obtenus ici sont beaucoup plus mitigés.

#### Résolution - Champ de Vue

Le champ de vue accessible en STXM est plus important (Fig. K-15-B) qu'en TEM. La résolution qui dépend de l'épaisseur du dernier anneau de la "zone-plate" de Fresnel utilisée (suite d'anneaux concentriques de rayon croissant et d'épaisseur décroissante) détermine la résolution qu'il est possible d'obtenir ( $1,2 \times \delta_{ann.}$  avec une épaisseur de cet anneau autour de  $\delta_{ann.} = 15$  nm dans notre cas). Dans cette expérience, la résolution estimée est donc de 25 nm pour la meilleure zone-plate et d'environ 50 nm pour la zone-plate de basse résolution. L'utilisation de l'une ou l'autre de ces phase-plates implique des conditions expérimentales différentes (focale plus importante pour la zone-plate basse résolution et donc possibilité d'utiliser des tilts de l'échantillon plus importants).

#### Alignement

L'alignement est grandement simplifié puisqu'il se réduit à quelques procédures (Fig. K-15-A) :

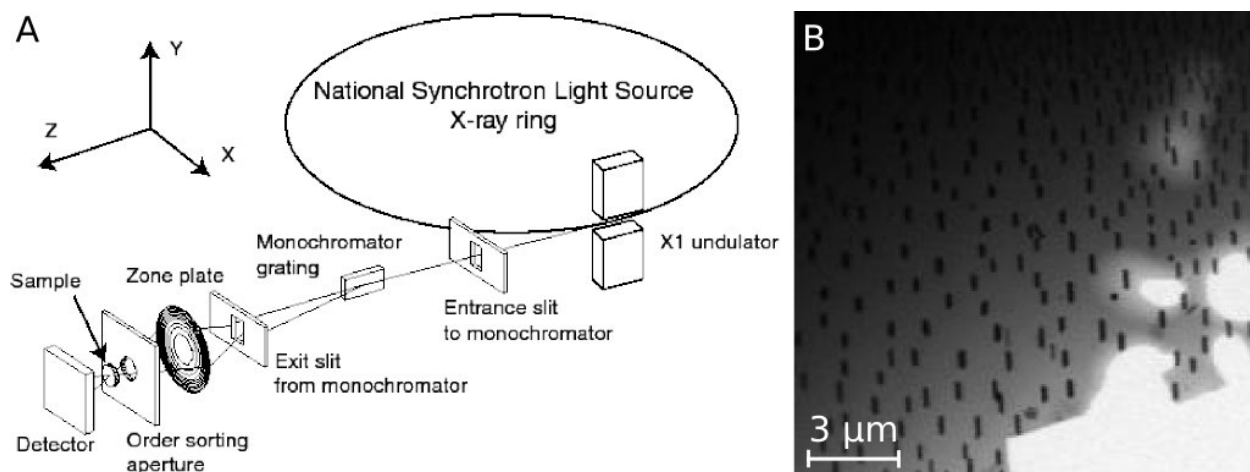


FIG. K-15: A Schéma de principe du banc de mesure STXM. B Echantillon utilisé pour l'expérience. L'image donne une idée du champ de vue accessible

- Alignement de l'OSA (Order Sorting Aperture) avec la phase plate. Cet OSA permet de sélectionner l'ordre de diffraction issu de la lentille de Fresnel (zone plate)
- Réglage de la focalisation de l'échantillon (relativement à la zone plate)
- Alignement du banc de mesure avec la ligne de lumière.

Cette simplicité permet aux utilisateurs d'être relativement rapidement indépendants vis-à-vis de l'instrument.

### Traitement des données

On retrouve ici les problèmes d'alignement entre images abordés lors de ce manuscrit. Il s'agit ici de soustraire deux images acquises avec deux polarisations de lumière différente (circulaire droite ou gauche). Cette sélection est réalisée en sélectionnant la lumière utilisée pour l'acquisition à différents angles solide dans l'onduleur d'où sont issus les rayons X (ceci est parfaitement calibré et ne nécessite que l'appui d'un bouton pour l'utilisateur).

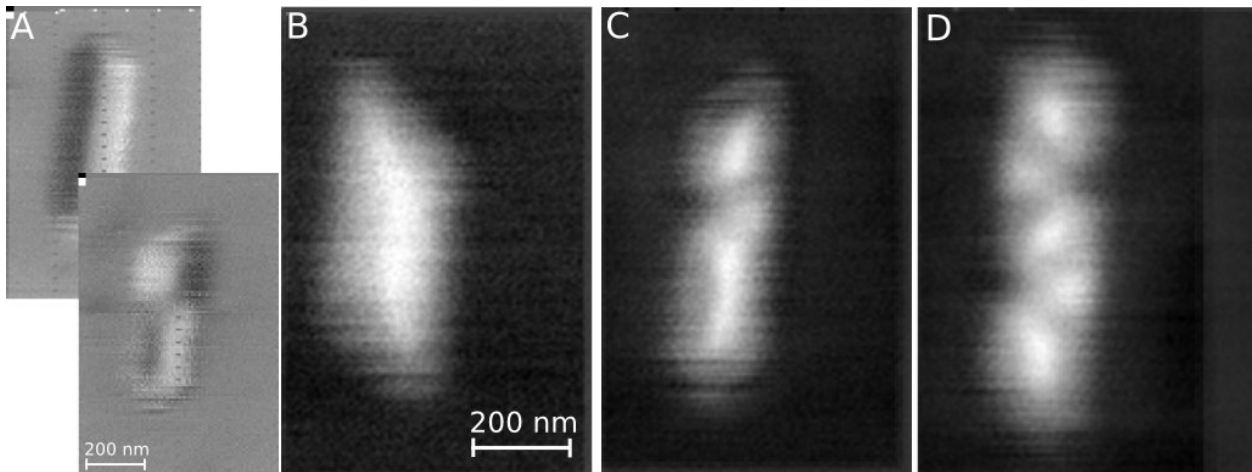
Ici toute erreur d'alignement entre les deux images avant leur soustraction peut causer des problèmes d'interprétation très importants. Le contraste étant issu de l'absorption (soit au seuil  $L_3$ , soit au seuil  $L_2$  du Fer dans notre cas) les variations d'épaisseur induisent une modification de signal qui peut être interprété pour du signal dichroïque. Ce traitement a été réalisé par Rachid Belkhou.

## Résultats

Les meilleures images de cette expérience sont présentées dans la Fig. K-16. L'image A présente les premiers résultats obtenus sur l'échantillon tilté à  $30^\circ$  par rapport au faisceau de lumière. Le tilt induit une composante parallèle au faisceau dans les domaines en bord de plot. Ces résultats n'apportent pas d'informations supplémentaires par rapport aux expérience menées en LTEM.

Les images proposées en Fig. K-16-B à D donnent par contre une information qui nous était jusqu'à présent cachée en LTEM : la polarisation de la paroi de Bloch (au centre des plots). Nous pouvons voir ici que quelque soit la configuration (Landau, double Landau ou triple Landau) la polarisation est identique dans tous les plots et les différentes parois de Bloch d'un même plot.

Ces résultats nécessitent encore une discussion plus approfondie.



**FIG. K-16:** A Résultats sur deux plots avec un tilt de  $30^\circ$ . B,C et D Trois configurations magnétiques différentes pour un tilt nul





# Bibliographie

- [1] P. Desproges. *Les réquisitoires du Tribunal des Flagrants Délires*. Points, 12 octobre 1982.
- [2] M.E. Hale, H.W. Fuller, and H. Rubinstein. Magnetic domain observations by electron microscopy. *Journal of Applied Physics*, 30 :789–791, 1959.
- [3] J.N. Chapman. The investigation of magnetic domain structures in thin foils by electron microscopy. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 17 :623–647, 1984.
- [4] W. F. Brown. *Micromagnetics*. Interscience, 1963.
- [5] F. Bitter. On inhomogeneities in the magnetization of ferromagnetic materials. *Physical Review*, 38 :1903–1905, 1931.
- [6] A. Hubert and R. Schäfer. *Magnetic Domains*. Springer, 1998.
- [7] T. Jourdan, A. Marty, and F. Lancon. Multiscale method for heisenberg spin simulations. *Phys Rev B*, 77 :224428, 2008.
- [8] T. Jourdan, F. Lançon, and A. Marty. Pinning of magnetic domain walls to structural defects in thin layers within a heisenberg-type model. *Phys. Rev. B*, 75 :094422, 2007.
- [9] C. Garcia-Cervera and A Roma. Adaptive mesh refinement for micromagnetics simulations. *IEEE Transactions on Magnetics*, 42 :1648–1654, 2006.
- [10] M.J. Bowman and A.D. Booth. A review of methods for the examination of magnetic domain structure. *Metallography*, 4 :103–131, 1971.
- [11] E. D. Dahlberg and R. Proksch. Magnetic microscopies : the new additions. *Journal Of Magnetism And Magnetic Materials*, 200(1-3) :720–728, October 1999.
- [12] E. Dan Dahlberg and Roger Proksch. Magnetic microscopies : the new additions. *JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS*, 200 :720–728, October 1999.
- [13] M. R. Freeman and B. C. Choi. Advances in magnetic microscopy. *Science*, 294(5546) :1484–1488, Nov 2001.
- [14] H. Hopster and H.P. Oepen. *Magnetic Microscopy of Nanostructures*. Springer, 2005.
- [15] G.K. Binnig, C.F. Quate, and Ch. Gerber. Atomic force microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 56 :930–933, 1986.
- [16] Nanoscan. <http://www.nanoscan.ch/products/hr-mfm.htm>.
- [17] Leon Abelmann, Steffen Porthun, Marc Haast, Cock Lodder, Andreas Moser, Margaret E Best, Pieter J.A van Schendel, Bruno Stiefel, Hans J Hug, Greg P Heydon, Andrew Farley, Steve R Hoon, Thomas Pfaffelhuber, Roger Proksch, and Ken Babcock. Comparing the resolution of magnetic force microscopes using the camst reference samples. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 190 :135–147, December 1998.
- [18] C.E. Diebel, R. Proksch, C.R. Green, P. Neilson, and M.M. Walker. Magnetite defines a vertebrate magnetoreceptor. *Nature*, 406 :299–302, 2000.

- [19] T. Yamaoka, K. Watanabe, Y. Shirakawabe, K. Chinone, E. Saitoh, M. Tanaka, and H. Miyajima. Applications of high-resolution mfm system with low-moment probe in a vacuum. *IEEE Transactions on magnetics*, 41 :3733, 2005.
- [20] H.J. Hug, B. Stiefel, P.J.A. vanSchendel, A. Moser, S. Martin, and Guntherodt H.-J. A low temperature ultrahigh vacuum scanning force microscope. *Rev.Sci.Instrum.*, 70 :3625, 1999.
- [21] A. Volodin, K. Temst, C. Van Haesendonck, and Y. Bruynseraede. Low temperature magnetic force microscopy with enhanced sensitivity based on piezoresistive detection. *Rev. Sci. Instrum.*, 71 :4468, 2000.
- [22] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel. Tunneling through a controllable vacuum gap. *Applied Physics Letters*, 40(2) :178–180, 1982.
- [23] R. Wiesendanger, H.-J. Güntherodt, G. Güntherodt, R.J. Gambino, and R. Ruf. Observation of vacuum tunneling of spin-polarized electrons with the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :247–250, 1990.
- [24] M Julliere. Tunneling between ferromagnetic-films. *Physics Letters A*, 54 :225–226, 1975.
- [25] M. Bode. Spin-polarized scanning tunnelling microscopy. *Rep. Prog. Phys.*, 66 :523–582, 2003.
- [26] R. Wiesendanger, M. Bode, A. Kubetzka, O. Pietzsch, M. Morgenstern, A. Wachowiak, and J. Wiebe. Fundamental studies of magnetism down to the atomic scale : present status and future perspectives of spin-polarized scanning tunneling microscopy. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 272-276 :2115–2120, 2004.
- [27] H.T. Coffey. Distribution of magnetic fields and currents in type ii superconductors. *Cryogenics*, 7 :73–77, 1967.
- [28] A. M. Chang, H. D. Hallen, L. Harriott, H. F. Hess, H. L. Kao, J. Kwo, R. E. Miller, R. Wolfe, J. van der Ziel, and T. Y. Chang. Scanning hall probe microscopy. *Applied Physics Letters*, 61(16) :1974–1976, 1992.
- [29] R.B. Dinner, M.R. Beasley, and K.A. Moler. Cryogenic scanning hall-probe microscope with centimeter scan range and submicron resolution. *Rev. Sci. Instrum.*, 76 :103702, 2005.
- [30] Z. Primadani and A. Sandhu. Variable temperature scanning hall probe microscopy of ferromagnetic garnet thin films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 310 :2693–2695, 2007.
- [31] J. R. Kirtley, M. B. Ketchen, K. G. Stawiasz, J. Z. Sun, W. J. Gallagher, S. H. Blanton, and S. J. Wind. High-resolution scanning squid microscope. *Applied Physics Letters*, 66(9) :1138–1140, 1995.
- [32] D. Rugar, H. Budakian, J. Mamin, and B. W. Chui. Single spin detection by magnetic resonance force microscopy. *Nature*, 430 :329–332, 2004.
- [33] D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz. Optical stethoscopy : Image recording with resolution  $\lambda/20$ . *Applied Physics Letters*, 44(7) :651–653, 1984.
- [34] S. Takahashi, W. Dickson, R. Pollard, and A. Zayats. Near-field magneto-optical analysis in reflection mode snom. *Ultramicroscopy*, 100(3-4) :443–447, August 2004.
- [35] W. Dickson, A. Stashkevitch, J. Ben Youssef, S. Takahashi, and A. V. Zayats. Snom imaging of thick ferromagnetic films : Image formation mechanisms and limitation. *Optics Communications*, 250(1-3) :126–136, June 2005.

- [36] J. Schoenmaker, A. D. dos Santos, A. C. Seabra, Y. Souche, J. P. Jamet, A. Thiaville, and J. Ferre. Local hysteresis loop measurements by magneto-optical scanning near-field optical microscope. *Journal Of Applied Physics*, 98(8) :086108, October 2005.
- [37] J. Schoenmaker, M. S. Lancarotte, A. C. Seabra, Y. Souche, and A. D. Santos. Magnetic characterization of microscopic particles by mo-snom. *J Microsc*, 214(Pt 1) :22–26, Apr 2004.
- [38] J. Kerr. *Philosophical Magazine*, 3 :339, 1877.
- [39] P. Zeeman. The effect of magnetisation on the nature of light emitted by a substance. *Nature*, 55 :347, 1897.
- [40] Wei-Hung Yeh, James Carriere, and M. Mansuripur. Polarization microscopy of magnetic domains for magneto-optical disks. *Applied Optics*, 38 :3749–3758, 1999.
- [41] M. R. Freeman, G. M. Steeves, G. E. Ballentine, and A. Krichevsky. Noise imaging using magneto-optical sampling techniques. *Journal Of Applied Physics*, 91 :7326–7330, 2002.
- [42] Z.Q. Qiu and S.D. Bader. Surface magneto-optic kerr effect. *Rev. Sci. Instrum.*, 71 :1243–1255, 2000.
- [43] D.A. Allwood, G. Xiong, M.D. Cooke, and R. P. Cowburn. Magneto-optical kerr effect analysis of magnetic nanostructures. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 36 :2175–2182, 2003.
- [44] O. Kitakami, Tomoaki Sakurai, Yoichi Miyashita, Yukio Takeno, Yutaka Shimada, Hisashi Takano, Hiroyuki Awano, Keikichi Ando, and Yutaka Sugita. Fine metallic particles for magnetic domain observations. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35 :1724, 1996.
- [45] Oscar de Abril, Maria del Carmen Sanchez, and Claudio Aroca. The effect of the in-plane demagnetizing field on films with weak perpendicular magnetic anisotropy. *Journal of Applied Physics*, 100(6) :063904, 2006.
- [46] I. S. Veschunov, L. Ya. Vinnikov, S. L. Bud’ko, and P. C. Canfield. Visualization of ferromagnetic domains in erni2b2c single crystals : Weak ferromagnetism and its coexistence with superconductivity. *PHYSICAL REVIEW B*, 76(17) :174506, NOV 2007.
- [47] J. Stohr, H. A. Padmore, S. Anders, T. Stammel, and M. R. Scheinfein. Principles of x-ray magnetic dichroism spectromicroscopy. *Surf. Rev. Lett*, 5 :1297–1308, 1998.
- [48] Schütz, Wagner, Wilhelm, Kienle, Zeller, Frahm, and Materlik. Absorption of circularly polarized x rays in iron. *Phys Rev Lett*, 58(7) :737–740, Feb 1987.
- [49] E. Bauer. Low energy electron microscopy. *Rep. Prog. Phys.*, 57 :895–938, 1994.
- [50] W. Kuch, L. I. Chelaru, F. Offi, J. Wang, M. Kotsugi, and J. Kirschner. Tuning the magnetic coupling across ultrathin antiferromagnetic films by controlling atomic-scale roughness. *Nat Mater*, 5(2) :128–133, Feb 2006.
- [51] T. Eimüller. *Magnetic Imaging of nanostructured systems wih Transmission X-ray Microscopy*. PhD thesis, Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2002.
- [52] S. Eisebitt, J. Lüning, W. F. Schlotter, M. Lörger, O. Hellwig, W. Eberhardt, and J. Stöhr. Lensless imaging of magnetic nanostructures by x-ray spectro-holography. *Nature*, 432(7019) :885–888, Dec 2004.
- [53] Y. Acremann, C. H. Back, M. Buess, O. Portmann, A. Vaterlaus, D. Pescia, and H. Melchior. Imaging precessional motion of the magnetization vector. *Science*, 290(5491) :492–495, Oct 2000.

- [54] Hermann Stoll, Aleksander Puzic, Bartel van Waeyenberge, Peter Fischer, Joerg Raabe, Matthias Buess, Thomas Haug, Rainer Hollinger, Christian Back, Dieter Weiss, and Gregory Denbeaux. High-resolution imaging of fast magnetization dynamics in magnetic nanostructures. *Applied Physics Letters*, 84(17) :3328–3330, 2004.
- [55] Stamm, Marty, Vaterlaus, Weich, Egger, Maier, Ramsperger, Fuhrmann, and Pescia. Two-dimensional magnetic particles. *Science*, 282(5388) :449–452, Oct 1998.
- [56] M. R. Scheinfein, J. Unguris, M.H Kelley, D.T. Pierce, and R.J. Celotta. Scanning electron microscopy with polarization analysis (sempa). *Rev. Sci. Instrum.*, 61 :2501–2527, 1990.
- [57] D. C. Joy. Smart—a program to measure sem resolution and imaging performance. *J Microsc.*, 208(Pt 1) :24–34, Oct 2002.
- [58] H. P. Oepen, G. Steierl, and J. Kirschner. Scanning electron microscope with polarization analysis : Micromagnetic structures in ultrathin films. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 20 :2535–2538, 2002.
- [59] M. De Graef. *Magnetic imaging and its applications to Materials*. Academic Press, 2001.
- [60] R. P. Ferrier, S. McVitie, A. Gallagher, and W. A. P. Nicholson. Characterisation of mfm tip fields by electron tomography. *IEEE Transactions on Magnetism*, 33(5) :4062–4064, September 1997.
- [61] C. Phatak, M. Beleggia, and M. De Graef. Vector field electron tomography of magnetic materials : Theoretical development. *Ultramicroscopy*, 108(6) :503–513, May 2008.
- [62] V. Stolojan, R. Dunin-Borkowski, M. Weyland, and P.A. Midgeley. Three-dimensional magnetic fields of nanoscale elements determined by electron-holographic tomography. *Inst. Phys. Conf. Ser.*, 168 :485–488, 2001.
- [63] R. Grimm, D. Typke, and W. Baumeister. Improving image quality by zero-loss energy filtering : quantitative assessment by means of image cross-correlation. *Journal of Microscopy (Oxford)*, 190 :339–349, June 1998.
- [64] Y. Aharonov and D. Bohm. Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory. *Physical Review*, 115(3) :485–491, 1959.
- [65] E. Volkl, Lawrence F. Allard, and David C. Joy. *Introduction to Electron Holography*. Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, 1999.
- [66] J. C. H. Spence. The future of atomic resolution electron microscopy for materials science. *Materials Science and Engineering : R : Reports*, 26(1-2) :1–49, October 1999.
- [67] J. N. Chapman, P. E. Batson, E. M. Wadell, and R. P. Ferrier. Direct determination of magnetic domain-wall profiles by differential phase-contrast electron microscopy. *Ultramicroscopy*, 3(2) :203–214, 1978.
- [68] F. Zernike. How i discovered phase contrast. *Science*, 121 :345–349, 1955.
- [69] N. H. Dekkers and H. de Lang. Differential phase contrast in a stem. *Optik*, 41 :452–456, 1974.
- [70] P. W. Hawkes. Half-plane apertures in tem, split detectors in stem and ptychography. *J. Optics*, 9 :235–241, 1978.
- [71] J.M. Cowley. Image contrast in a transmission scanning electron microscope. *Applied Physics Letters*, 15 :58–59, 1969.

- [72] I. R. McFadyen. Implementation of differential phase-contrast lorentz microscopy on a conventional transmission electron-microscope. *Journal of Applied Physics*, 64(10) :6011–6013, November 1988.
- [73] A.C. Daykin and A.K. Petford-Long. Quantitative mapping of the magnetic induction distribution using foucault images formed in a transmission electron microscope. *Ultramicroscopy*, 58 :365–380, 1995.
- [74] P.A. Stadelman. Ems - a software package for electron diffraction analysis and hrem image simulation in materials science. *Ultramicroscopy*, 21 :131–145, 1987.
- [75] D. Paganin and K.A. Nugent. Noninterferometric phase imaging with partially coherent light. *Physical review letters*, 80 :2586–2589, 1998.
- [76] M. Beleggia, M.A. Schofield, V.V. Volkov, and Y. Zhu. On the transport of intensity technique for phase retrieval. *Ultramicroscopy*, 102 :37–49, 2004.
- [77] M.R. Teague. Deterministic phase retrieval : a green’s function solution. *Journal of the Optical Society of America*, 73 :1434–1441, 1983.
- [78] Nugent, Gureyev, Cookson, Paganin, and Barnea. Quantitative phase imaging using hard x rays. *Phys Rev Lett*, 77(14) :2961–2964, Sep 1996.
- [79] C.B. Boothroyd and R.E. Dunin-Borkowski. The direct determination of magnetic induction maps from lorentz images. In *Inst. Phys. Conf. Ser.*, volume 161 of 6, pages 283–286, 25-27 August 1999.
- [80] V.V. Volkov, Y. Zhu, and M. De Graef. A new symmetrized solution for phase retrieval using the transport of intensity equation. *Micron*, 33 :411–416, 2002.
- [81] S. McVitie and M. Cushley. Quantitative fresnel lorentz microscopy and the transport of intensity equation. *Ultramicroscopy*, 106(4-5) :423–431, March 2006.
- [82] D. Gabor. A new microscopic principle. *NATURE*, 161 :777–778, 1948.
- [83] J.M. Cowley. Twenty form of electron holography. *Ultramicroscopy*, 41 :335–348, 1992.
- [84] K. J. Hanssen. Holographic reconstruction methods in electron microscopy and their contrast-theoretical interpretation .a. in-line fresnel holography. *Optik*, 32 :74, 1970.
- [85] J. M. Cowley. Electron holography with atomic focusers. *Phys. Rev. Lett.*, 84(16) :3618–3621, Apr 2000.
- [86] J.M. Cowley. Ultra-high résolution with off-axis stem holography. *Ultramicroscopy*, 96 :163, 2003.
- [87] A. Tonomura. *Electron Holography*. Springer, 2nd edition, July 1999.
- [88] G. Möllenstedt and H. Düker. *Naturewissenschaften*, 42 :41, 1954.
- [89] T. Mulvey. The möllenstedt electron bi-prism and electron holography. *Optik*, 77 :39–45, 1987.
- [90] M. H. Kryder and R. W. Gustafson. High-density perpendicular recording - advances, issues, and extensibility. *JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS*, 287 :449–458, February 2005.
- [91] Xiong G. Allwood, D. A., C. C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, and R. P. Cowburn. Magnetic domain-wall logic. *Science*, 309 :1688, 2005.

- [92] L. Neel. *Annales Geophysicae*, 5 :99, 1949.
- [93] A. Krauth, G. Tomandl, and G. H. Frishat. Mossbauer studies of superpara-ferro- and antiferromagnetic  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  as function of crystallite size. *Zeitschrift Fur Angewandte Physik*, 23(6) :419–&, 1967.
- [94] C. W. Chen. Fabrication and characterization of thin-films with perpendicular magnetic-anisotropy for high-density magnetic recording .1. a review. *Journal of Materials Science*, 26 :1705–1728, April 1991.
- [95] Sakhraat Khizroev and Dmitri Litvinov. *Perpendicular Magnetic Recording*. Kluwer Academic Publishers, August 2004.
- [96] T. Valet and A. Fert. Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers. *Physical Review B*, 48 :7099–7113, September 1993.
- [97] S. N. Mao, Y. H. Chen, F. Liu, X. F. Chen, B. Xu, P. L. Lu, M. Patwari, H. W. Xi, C. Chang, B. Miller, D. Menard, B. Pant, J. Loven, K. Duxstad, S. P. Li, Z. Y. Zhang, A. Johnston, R. Lamberton, M. Gubbins, T. McLaughlin, J. Gadbois, J. Ding, B. Cross, S. Xue, and P. Ryan. Commercial tmr heads for hard disk drives : Characterization and extendibility at 300 gbit/in(2). *IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS*, 42 :97–102, February 2006.
- [98] L. S. Fan, H. H. Ottesen, T.C. Reiley, and R. V. Wood. Magnetic recording head positioning at very high track densities using a microactuator-based, 2-stage servo system. *IEEE Transactions on industrial electronics*, 42 :222–233, June 1995.
- [99] A. A. Renshaw. Increasing the maximum stable rotation speed of a circular disk using speed dependent clamping. *Journal of Sound and Vibrations*, 210 :431–439, 1998.
- [100] J. R. Douceur and W. J. Bolosky. A large-scale study of file-system contents. In *Joint International Conference on Measurement and Modeling of Computer Systems*, pages 59–70, 1999.
- [101] S. I. S. Iwasaki and Y. Nakamura. Analysis for magnetization mode for high-density magnetic recording. *IEEE Transactions on Magnetics*, 13 :1272–1277, 1977.
- [102] F.H. Liu, K. Stoev, X. Shi, H.C. Tong, H. Chen, C. Qian, Z.W. Dong, X. Yan, M. Gibbons, S. Fundada, Y. Liu, P. Prabhu, R. Barr, S. Dey, M. Schultz, S. Malhortra, B. Lal, J. Kimmal, M. Russak, P. Kern, D. Wachenschwanz, and L. Mei. Demonstration of greater than 25 gigabit per square inch recording systems. In *Magnetics Conference, 2000. INTERMAG 2000 Digest of Technical Papers. 2000 IEEE International*, 2000.
- [103] <http://www.hitachi.us/Apps/hitachicom/content.jsp?page=PressReleases/details/09132006.html&path=Media/>. Hitachi storage breakthrough signals bright future on hard drives 50th-birthday. Technical report, Hitachi Ltd, 2006.
- [104] Moser A. Weller, D., L. Folks, W. Best, M. E. and Lee, M.F. Toney, M. Schwickert, J-U. Thiele, and M.F. Doerner. High ku materials approach to 100 gbits/in<sup>2</sup>. *IEEE Transaction on Magnetics*, 36 :10, 2000.
- [105] J. P. Attane, Y. Samson, A. Marty, J. C. Toussaint, G. Dubois, A. Mougin, and J. P. Jamet. Magnetic domain wall propagation unto the percolation threshold across a pseudorectangular disordered lattice. *Physical Review Letters*, 93(25) :257203, December 2004.
- [106] D. Halley. *Croissance, mise en ordre chimique et relaxation des contraintes épitaxiales des alliages FePd et FePt*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2001.

- [107] V. Gehanno, A. Marty, B. Gilles, and Y. Samson. Magnetic domains in epitaxial ordered fepd(001) thin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Physical Review B*, 55(18) :12552–12555, May 1997.
- [108] G. Beutier. *Etude de Nanostructures magnétiques par Diffraction résonnante et cohérente de Rayons X mous*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2005.
- [109] V. Gehanno. *Anisotropie Magnétique Perpendiculaire des couches minces épitaxiées d'alliages ordonnés FePd*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1997.
- [110] J-P. Attané. *Interactions entre parois magnétiques et défauts structuraux, et mise en ordre chimique par irradiation, observées dans des couches minces d'alliages FePd(FePd)*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2003.
- [111] K. Chesnel. *Diffusion Magnétique Résonante des Rayons X appliquée à l'étude de nanostructures Magnétiques*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2002.
- [112] A. COUJOU, A. BENETEAU, and G. ALCOUFFE. Method for characterization of microtwin order with respect to sources, using insitu observation. *Acta Metallurgica*, 36(6) :1537–1542, June 1988.
- [113] M. Kohler, T. Schweinbock, T. Schmidt, J. Zweck, G. Bayreuther, P. Fischer, G. Schutz, T. Eimuller, P. Guttman, and G. Schmahl. Imaging of sub-100-nm magnetic domains in atomically stacked fe(001)/au(001) multilayers. *Journal of Applied Physics*, 87(9) :6481–6483, 2000.
- [114] P.R. Aitchison, J.N. Chapman, V. Gehanno, I.S. Weir, M.R. Scheinfein, S. McVitie, and A. Marty. High resolution measurement and modelling of magnetic domain structures in epitaxial fepd (0 0 1) 110 films with perpendicular magnetisation. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 223 :138–146, 2001.
- [115] T. Hino, Y. Murakami, D. Shindo, S. Okamoto, O. Kitakami, and Y. Shimada. Observation of magnetic domain structure in fept (001) films by electron holography and lorentz microscopy. *Journal Of The Japan Institute Of Metals*, 68(5) :315–319, May 2004.
- [116] T. Klemmer, D. Hoydick, H. Okumura, B. Zhang, and W. A. Soffa. Magnetic hardening and coercivity mechanisms in 11(0) ordered fepd ferromagnets. *Scripta Metallurgica et Materialia*, 33(10-11) :1793–1805, December 1995.
- [117] R. E. Dunin-Borkowski. The development of fresnel contrast analysis, and the interpretation of mean inner potential profiles at interfaces. *Ultramicroscopy*, 83(3-4) :193–216, June 2000.
- [118] J. Dooley and M. De Graef. Energy filtered magnetic induction mapping. *Micron*, 28(5) :371–380, October 1997.
- [119] N. Bonnet, M. Herbin, and P. Vautrot. Extension of the scatterplot approach to multiple images. *Ultramicroscopy*, 60 :349–355, 1995.
- [120] K. Matsuyama, H. Asada, and S. Konishi. Computer-simulation of vertical bloch line propagation around stripe domain head. *Ieee Transactions On Magnetism*, 21(5) :1770–1772, 1985.
- [121] S. C. Badescu, V. Badescu, N. Rezlescu, and R. Badescu. Modeling the dynamics of a domain wall with a pi vertical bloch line. *Journal Of Magnetism And Magnetic Materials*, 197 :791–793, May 1999.

- [122] A. Thiaville, J. Miltat, and J. Ben Youssef. Dynamics of vertical bloch lines in bubble garnets : Experiments and theory. *European Physical Journal B*, 23(1) :37–47, September 2001.
- [123] F. B. Humphrey and J. C. Wu. Vertical bloch line memory. *Ieee Transactions On Magnetism*, 21(5) :1762–1766, 1985.
- [124] H.J. Kreuzer and R.A. Pawlitzek. Digital in-line holography. *Europhysics News*, 34, 2003.
- [125] M.R. McCartney and D.J. Smith. Electron holography and lorentz microscopy of magnetic thin films and multilayers. *Scanning Microscopy*, 11 :335–344, 1997.
- [126] T. Malis, S. C. Cheng, and R. F. Egerton. Eels log-ratio technique for specimen-thickness measurement in the tem. *J Electron Microsc Tech*, 8(2) :193–200, Feb 1988.
- [127] M. R. McCartney, D. J. Smith, R. F. C. Farrow, and R. F. Marks. Off-axis electron holography of epitaxial fept films. *Journal Of Applied Physics*, 82(5) :2461–2465, September 1997.
- [128] R. E. Dunin-Borkowski, T. Kasama, A. Wei, S. L. Tripp, M. J. Hytch, E. Snoeck, R. J. Harrison, and A. Putnis. Off-axis electron holography of magnetic nanowires and chains, rings, and planar arrays of magnetic nanoparticles. *Microscopy Research And Technique*, 64(5-6) :390–402, August 2004.
- [129] D.B. Williams and C. B. Carter. *Transmission Electron Microscopy : I. Basics*. Plenum Publishers, 1996.
- [130] J. Miltat, A. Thiaville, and P. Trouilloud. Néel lines structures and energies in uniaxial ferromagnets with quality factor  $q > 1$ . *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 82 :297–308, 1989.
- [131] T. Jourdan. *Approche multiéchelle pour le magnétisme. Application aux hétérogénéités structurales et aux singularités magnétiques*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2008.
- [132] A. Hubert. Mikromagnetisch singuläre punkte in bubblesmicromagnetic singular points in bubbles. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2 :25–31, 1976.
- [133] Y. Togawa, T. Kimura, K. Harada, T. Matsuda, A. Tonomura, and Y. Otani. Current-excited magnetization reversal under in-plane magnetic field in a nanoscaled ferromagnetic wire. *Applied Physics Letters*, 92 :012505, 2008.
- [134] Y. Y. Wang, M. Kawasaki, J. Bruley, M. Gribelyuk, A. Domenicucci, and J. Gaudiello. Off-axis electron holography with a dual-lens imaging system and its usefulness in 2-d potential mapping of semiconductor devices. *Ultramicroscopy*, 101(2-4) :63–72, Nov 2004.
- [135] B. Hayes. Third base. *American Scientist*, 89(4) :490, July 2001.
- [136] H.T. Mouftah and A.I. Garba. Vlsi implementation of a 5-trit full adder. *IEEE Proceedings - G Circuits devices and systems*, 131 :214–220, 1984.
- [137] Yoshinobu Nakatani, André Thiaville, and Jacques Miltat. Faster magnetic walls in rough wires. *Nat Mater*, 2(8) :521–523, Aug 2003.
- [138] R. Hertel, S. Gliga, M. Fähnle, and C. M. Schneider. Ultrafast nanomagnetic toggle switching of vortex cores. *Phys Rev Lett*, 98(11) :117201, Mar 2007.
- [139] A. Arrott, B. Heinrich, and A. Aharoni. Point singularities and magnetization reversal in ideally soft ferromagnetic cylinders. *IEEE Trans. Magn.*, 15 :1228, 1979.



- [140] A. S. Arrott. Solving the selectivity problem in magnetic random access memories using configurations that form c-states. *Z. Metallkd.*, 93 :10, 2002.
- [141] K. Okuno, T. Shigeto, T. Ono, K. Mibu, and T. Shinjo. Mfm study of magnetic vortex cores in circular permalloy dots : behavior in external field. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 240 :1–6, 2002.
- [142] W. Jung, F. J. Castaño, and C. A. Ross. Vortex chirality in exchange-biased elliptical magnetic rings. *Phys Rev Lett*, 97(24) :247209, Dec 2006.
- [143] F. Cheynis, N. Rougemaille, R. Belkhou, J.-C. Toussaint, and O. Fruchart. X-ray photoelectron emission microscopy in combination with x-ray magnetic circular dichroism investigation of size effects on field-induced [e-acute]el-cap reversal. *Journal Of Applied Physics*, 103(7) :07D915, 2008.
- [144] P.O. Jubert, J.C. Toussaint, O. Fruchard, C. Meyer, and Y. Samson. Flux-closure-domain states and demagnetizing energy determination in sub-micron size magnetic dots. *Europhysics Letters*, 63 :135–141, 2003.
- [145] F. Cheynis. *Plots de Fer auto-assemblées : systèmes modèles pour le micromagnétisme de paroi magnétiques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2007.
- [146] O. Fruchart. *Fabrication, study and modelling of a model magnetic system : arrays of ultrathin sub-micrometer-sized dots of Fe(110) with in-plane magnetization*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1998.
- [147] K. Y. Guslienko and A. Hoffmann. Field evolution of tilted vortex cores in exchange-biased ferromagnetic dots. *Physical Review Letters*, 97(10) :107203, September 2006.
- [148] J.M. Torres Bruna, J. Bartolomé, L.M. García Vinuesa, F. Garcia Sanchez, J.M. Gonzalez, and O.A. Chubykalo-Fesenko. A micromagnetic study of the hysteretic behavior of antidot fe films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 290-291 :149–152, 2005.
- [149] Shinjo, Okuno, Hassdorf, Shigeto, and Ono. Magnetic vortex core observation in circular dots of permalloy. *Science*, 289(5481) :930–932, Aug 2000.
- [150] André Thiaville, José Miguel García, Rok Dittrich, Jacques Miltat, and Thomas Schrefl. Micromagnetic study of bloch-point-mediated vortex core reversal. *Phys. Rev. B*, 67(9) :094410, Mar 2003.
- [151] B. Van Waeyenberge, A. Puzic, H. Stoll, K. W. Chou, T. Tylliszczak, R. Hertel, M. Fahnle, H. Bruckl, K. Rott, G. Reiss, I. Neudecker, D. Weiss, C. H. Back, and G. Schutz. Magnetic vortex core reversal by excitation with short bursts of an alternating field. *Nature*, 444(7118) :461–464, November 2006.
- [152] Keisuke Yamada, Shinya Kasai, Yoshinobu Nakatani, Kensuke Kobayashi, Hiroshi Kohno, André Thiaville, and Teruo Ono. Electrical switching of the vortex core in a magnetic disk. *Nat Mater*, 6(4) :269–263, Apr 2007.
- [153] F. Feldtkeller. *Bloch lines in nickel-iron films*, pages 98–110. Koninklijke Vlaamse Acad., 1961.
- [154] S. Foss, R. Proksh, D. Dahlberg, B. Moskowitz, and B. Walsch. Localized micromagnetic perturbation of domain walls in magnetite using a magnetic force microscope. *Applied Physics Letters*, 69 :3426, 1996.

- [155] K. Ramstöck, W Hartung, and A. Hubert. The phase diagram of narrow domain walls in narrow magnetic strips. *Phys. Status Solidi A*, 155 :505–518, 1996.
- [156] R. Hertel and H. Kronmüller. Computation of the magnetic domain structure in bulk permalloy. *Phys. Rev. B*, 60 :7366–7378, 1999.
- [157] H. A. M. van den Berg and A. H. J. van den Brandt. Self-consistent domain theory in soft-ferromagnetic media. iii. composite domain structures in thin-film objects. *Journal of Applied Physics*, 62(5) :1952–1959, 1987.
- [158] H. A. M. van den Berg. Self-consistent domain theory in soft-ferromagnetic media. ii. basic domain structures in thin-film objects. *Journal of Applied Physics*, 60(3) :1104–1113, 1986.
- [159] H. A. M. van den Berg. Self-consistent domain theory in soft ferromagnetic media. i. solenoidal distributions in elliptical thin-film elements. *Journal of Applied Physics*, 57(6) :2168–2173, 1985.
- [160] O. Fruchart, P.O. Jubert, M. Eleoui, F. Cheynis, B. Borca, P. David, V. Santonacci, A. Lienard, M. Hasegawa, and C. Meyer. Growth modes of fe(110) revisited : a contribution of self-assembly to magnetic materials. *J. Phys. : Condens. Matter*, 19 :053001, 2007.
- [161] J. C. Toussaint, A. Marty, N. Vukadinovic, J. B. Youssef, and M. Labrune. A new technique for ferromagnetic resonance calculations. *Computational Materials Science*, 24(1-2) :175–180, May 2002.
- [162] Martin J Hÿtch, Jean-Luc Putaux, and Jean-Michel Pénisson. Measurement of the displacement field of dislocations to 0.03 Å by electron microscopy. *Nature*, 423(6937) :270–273, May 2003.
- [163] A. V. Ramos, J. B. Moussy, M. J. Guittet, A. M. Bataille, M. Gautier-Soyer, M. Viret, C. Gatel, P. Bayle-Guillemaud, and E. Snoeck. Magnetotransport properties of fe<sub>3</sub>o<sub>4</sub> epitaxial thin films : Thickness effects driven by antiphase boundaries. *Journal Of Applied Physics*, 100(10) :103902, November 2006.
- [164] S. Middelhoek. Domain walls in thin ni-fe films. *J. Appl. Phys.*, 34 :1054, 1963.
- [165] T. Taniuchi, M. Oshima, H. Akinaga, and K. Ono. Vortex-chirality control in mesoscopic disk magnets observed by photoelectron emission microscopy. *Journal of Applied Physics*, 97 :10J904, 2005.
- [166] R. Nakatami, T. Yoshida, Y. Endo, Kawamura, M. Yamamoto, T. Takenaga, S. Aya, T. Kuroiwa, S. Beysen, and H. Kobayashi. Magnetization chirality due to asymmetrical structure in ni-fe annular dots for high-density memory cells. *Journal of Applied Physics*, 95 :6714–6716, 2004.
- [167] P. A. Doyle and P. S. Turner. Relativistic hartree-fock x-ray and electron scattering factors. *Acta Crystallographica Section A-Crystal Physics Diffraction Theoretical And General Crystallography*, A 24 :390–&, 1968.
- [168] F. Houdellier and M. J. Hÿtch. Diffracted phase and amplitude measurements by energy-filtered convergent-beam holography (chef). *Ultramicroscopy*, 108(3) :285–294, Feb 2008.
- [169] A. Averbuch, R.R. Coifman, D.L. Donoho, M. Elad, and M. Israeli. Fast and accurate polar fourier transformations. *Appl. Comput. Harmon. Anal.*, 21 :145–167, 2006.
- [170] K. Ishizuka. Contrast transfer of crystal images in tem. *Ultramicroscopy*, 5 :55–65, 1980.
- [171] J. W. Cooley and J. W. Tukey. An algorithm for the machine calculation of complex fourier series. *Math. Comput.*, 19 :297–301, 1965.

# Glossaire

## C

**Charges magnétiques** La charge magnétique est une visualisation et non un fait physique comme peut l'être la charge électrique (il n'existe à priori pas de monopôle magnétique possédant une charge élémentaire, comme la charge négative de l'électron par exemple). L'effet de ces charges (le champ démagnétisant) se déduit tout de même comme il est fait pour un champ électrique, à partir des équations de Maxwell appliquées à la formulation de l'induction magnétique :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = \vec{\nabla} \cdot \left( \mu_0 (\vec{H}_d + \vec{M}) \right) = 0$$

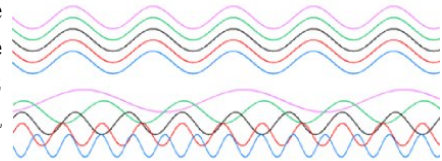
d'où l'on tire aisément

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H}_d = -\vec{\nabla} \cdot \vec{M}$$

Le terme de  $-\vec{\nabla} \cdot \vec{M}$  peut être comparé à l'électrostatique ( $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0}$ ), et à la manière des charges électrique ( $\rho$ ) produisant un champ électrique ( $\vec{E}$ ), on parle alors de charges magnétiques à l'origine du champ démagnétisant  $H_d$ .

**Cohérence** Considérant 2 particules ayant un caractère ondulatoire (dans notre cas, les électrons) on nomme le degré de similitude entre les 2 ondes qu'elle décrivent, la cohérence.

Cette cohérence peut être **spatiale** si on compare deux particules en 2 points donnés, ou **temporelle** si on effectue la comparaison dans le temps. C'est cette cohérence qui définit la capacité de l'onde à interférer.



- La cohérence temporelle se définit à partir de la largeur spectrale de la source (la dispersion chromatique  $\Delta\nu$ ). Ainsi, 2 particules séparées d'un temps de  $\tau_c = \frac{1}{\Delta\nu}$  ne peuvent interférer (la longueur de cohérence se décrit alors par  $L_c = v \cdot \tau_c$ , avec  $v$  la vitesse de l'onde).
- La cohérence spatiale décrit elle la capacité de deux point du front d'onde à interférer. On appelle largeur de cohérence la disatnce  $l_c = \frac{\lambda D}{\Delta S}$  ( $D$  est la distance par rapport à la source,  $\lambda$  la longueur d'onde et  $\Delta S$  la largeur de distribution spatiale d'intensité.)

**Contraste** Le contraste est une donnée très importante dans la notion de résolution en imagerie. Elle va déterminer la gamme d'information disponible dans l'image.

On calcule ce contraste en fonction des intensités maximum et minimums dans l'image :

$$C = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}$$

. Ainsi une image aura un très bon contraste si l'écart entre les intensités max et min est très grand devant l'intensité moyenne de l'image. En microscopie électronique, un contraste au dessus de 50 % qualifie une image très contrastée, et au delà de 30 % la qualité est très bonne.



## D

**Diffraction Electronique** Dans un cristal, l'interaction entre le réseau cristallin et le faisceau électronique est complexe : chaque atome va diffuser les électrons, et chaque électron diffusé va interagir avec les autres électrons (en se limitant à une seule interaction électron matière, élastique qui plus est).

Cette interaction a été formalisée par William Bragg (1870 - 1971) dans sa théorie de la diffraction des rayons X qui relie la distance entre deux plans cristallins et l'angle de diffusion (donc de diffraction) des particules considérées :  $2d_{hkl}\sin(\theta) = n\lambda$  (où  $d_{hkl}$  est la distance entre plans - distance réticulaire,  $\theta$  est l'angle de diffraction et  $\lambda$  est un nombre entier de longueur d'ondes des particules). Cette loi permet de décrire le comportement du faisceau électronique à la traversée d'un cristal. De plus, on sait depuis Descartes que deux rayons parallèles traversant une lentille sont focalisés au même point, le foyer de la lentille. On va donc avoir au foyer (on parle en optique électronique de plan de diffraction) un ensemble de points correspondant aux diverses diffractions des électrons par le réseau cristallin.

On peut déduire la forme qu'aura cette figure de diffraction, à partir de la construction d'Ewald (1888 - 1985). Cette construction permet de déterminer à partir du réseau cristallin, la forme que doit prendre la figure de diffraction en fonction de la longueur d'onde utilisée (intersection d'une sphère (la sphère d'Ewald) avec le réseau réciproque).

## F

**Fast Fourier Transform** La transformée de Fourier est un outil de décomposition d'une fonction intégrable dans le domaine des fonctions périodiques :  $\mathcal{F}(f)[k] = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x)e^{-iqx} dx$ . Son utilisation sur une fonction permet de décomposer la fonction en une somme de plusieurs fonctions trigonométriques, représentant alors le spectre de fréquence de la fonction considérée. Cette définition continue de la transformation a tout d'abord été développée en termes discrets (Transformée de Fourier Discrète) pour s'adapter au traitement des signaux analogiques (tels le son). Puis ont été développés de nombreux algorithmes numériques (le plus connu est celui de Cooley<sup>171</sup> et le plus puissant connu aujourd'hui est le "Fastest Fourier Transform in the WEST (FFTW)") de traitement de cette transformée discrète, tous réunis sous le terme de Transformée de Fourier Rapide (ou Fast Fourier Transform en anglais). Le principe de tous ces algorithmes est de diviser le problème de découpage en séries (au lieu de sommer sur l'infini dans le cas de la définition continue, on somme sur un ensemble discret à  $n$  composantes) et ainsi de diminuer le temps de calcul par des facteurs supérieurs à 100. Pour une idée concrète, le temps de calcul en transformée discrète est exprimé en  $n^2$  (soit  $\sim 10^6$  pour 1024 pixels dans nos images) alors que pour la FFT, il s'exprime en  $n \cdot \ln n$  (soit  $\sim 7.10^3$  pour 1024 pixels).

## H

**Hystérésis** Le phénomène hystérétique est associé à un effet dépendant d'une cause : il y a une hystérèse quand l'effet ne suit pas la même dépendance de la cause suivant qu'il est balayé de façon croissante ou décroissante. Pour un matériau ferromagnétique, l'hystérésis correspond à l'aimantation du matériau en fonction du champ magnétique appliqué pour un champ croissant et décroissant. Le cycle est majeur s'il va jusqu'à la saturation pour chaque sens du champ magnétique. Il est mineur sinon. On définit ainsi le champ coercitif correspondant au champ nécessaire pour passer à l'aimantation nulle, et la rémanence, l'état d'aimantation pour un champ appliqué nul.

Pierre Bourdieu a ainsi transposé ce concept aux sciences sociales. L'**hystérésis de l'habitus** désigne les acquis d'un individu dans son processus de socialisation. Ces

acquis perdurent même si la socialisation cesse. Si l'environnement social change, l'individu tendra à conserver, au moins durant un moment, ses dispositions initiales.

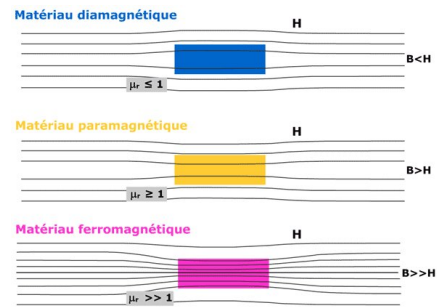
## P

**Permeabilité Magnétique** C'est la capacité d'un matériau à condenser les lignes de flux magnétique et donc à augmenter le champ magnétique  $\vec{B}$ . On l'exprime en général de manière relative au vide :  $\mu = \mu_r \cdot \mu_0$  où  $\mu_0$  est la perméabilité du vide, soit  $4\pi \cdot 10^{-7} H.m^{-1}$ . La perméabilité est inférieure à 1 pour un matériau diamagnétique et supérieure à 1 pour les matériaux paramagnétiques.

Pour le cas des ferromagnétiques elle varie avec le champ appliqué et elle diminue jusqu'à devenir égale à 1 quand le matériau est saturé (elle est de 10 000 maximum pour le fer). La perméabilité est liée à la susceptibilité magnétique par la relation :  $\mu = 1 + \chi$ . On a pour cela

$$\vec{B} = \mu \vec{H} = \mu_0 (\vec{H} + \chi \vec{H}) = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M})$$

qui exprime bien la notion de perméabilité (action sur  $\vec{B}$  via  $\vec{H}$ , le champ magnétique).



**Potentiel Vecteur** Un champ vectoriel (comme la distribution magnétique d'un système) possède un potentiel qui permet de le définir de façon mathématique. Un exemple pourrait être la définition du potentiel gravitationnel, qui, pour un objet stellaire donné, définit parfaitement le champ vectoriel de gravitation qui l'entoure uniquement à partir de ce potentiel. Ce potentiel est alors calculé à partir de la masse et des dimensions de l'objet considéré. La simple connaissance de ce potentiel permet de remonter au champ vectoriel correspondant moyennant la connaissance d'un point particulier de ce champ, qu'on appellera une jauge. Il existe alors deux types de potentiel : les **potentiels scalaires** (comme celui que nous venons de décrire), qui définissent des champs vectoriels dits irrotationnel, sont les plus simples puisque définis à partir d'un scalaire, une grandeur facilement mesurable (comme le potentiel électrique par exemple) et les **potentiels vecteurs**, qui décrivent des champs vectoriels à divergence nulle (comme décrit pour un champ magnétique par les équations de Maxwell :  $\vec{B} = \text{rot} \vec{A}$ ). Le potentiel vecteur est donc un vecteur qui va définir un champ vectoriel différent suivant sa norme et sa direction. Généralement, sa manipulation, restreinte aux champs magnétiques, s'effectue sur seulement l'une de ses composantes, pour simplifier le calcul.

La définition d'un tel potentiel n'est pas univoque (*i.e.* est donné à une constante près). On utilise pour cela des conditions normalisées, calculées pour des conditions particulières mais réalisant des hypothèses qui s'étendent à de très nombreux cas. Dans le cas du magnétisme (et dans ce manuscrit) on utilise la jauge de Coulomb qui définit :

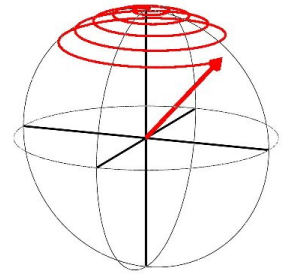
$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$$

Cette Jauge est seulement valable pour les champs statiques (elle dérive de la jauge de Lorenz, plus générale).

**Précession** La précession est la rotation autour d'un axe, d'un autre axe lui-même de rotation. Ce phénomène peut être rapproché du mouvement final d'une toupie, qui continue à tourner mais dont l'axe de rotation se rapproche de plus en plus de la position horizontale.

Sous l'action d'un champ extérieur, le moment magnétique des électrons et des atomes va précesser : c'est la précession de Larmor. Ceci se traduit par un couple qui fait précesser les moments magnétique à une fréquence, définie comme la fréquence de Larmor.

Les deux applications directes de ce principe sont la **résonance ferromagnétique** permettant de sonder le moment magnétique des électrons, et la **résonance magnétique nucléaire** qui est la base de l'imagerie médicale (IRM).



## S

### Spin

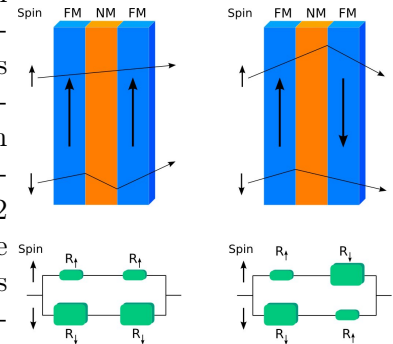
C'est une propriété intrinsèque des particules (au même titre que la masse ou la charge). On peut le décrire (mais c'est quantiquement faux !) comme une rotation sur elle même de la particule entraînant un moment cinétique le long de l'axe de rotation. Plus généralement la notion de spin correspond à la fraction de rotation complète ( $2\pi$ ) que l'on doit effectuer pour récupérer l'état initial : un objet de spin  $S$  est donc invariant suivant une rotation de  $\frac{2\pi}{S}$ . Un rectangle a par exemple un spin 2 (une demi-rotation permet de retrouver l'état initial), un carré a lui un spin 4 (un quart de rotation suffit), et un cercle aurait un spin infini. En 3 dimensions et avec des particules quasi-ponctuelles, le problème est un peu différent. L'électron par exemple possède un spin  $\frac{1}{2}$ , c'est à dire qu'il lui faut 2 tours complets pour retrouver son état initial (ce qui est assez difficile à imaginer avec des formes usuelles <sup>†</sup>...). Pour les particules que nous connaissons on peut définir : le spin 0 du boson de Higgs ; le spin 1/2 de l'électron, du positron, du proton ou du neutron ; le spin 1 du photon ; et le spin 2 du graviton.

D'une manière simpliste la notion de spin que nous utilisons dans ce manuscrit est la notion d'aimant élémentaire, issu de la rotation des électrons, possédant leur spin propre, autour du noyau et produisant ainsi en lieu de l'atome, un spin résultant. La notion de magnétisme à une échelle plus petite est une autre science.

**Spin Valve** La vanne de spin est l'exemple le plus parlant pour représenter l'effet de Magnéto-résistance Géante (GMR).

Deux couches ferromagnétiques sont séparées par une couche non magnétique. La première a une orientation magnétique fixe, l'autre est la couche "libre", dont l'aimantation peut être inversée (par le passage au-dessus d'un bit de donnée magnétique par exemple). Un électron assurant la conduction de l'électricité possède un spin qui peut avoir une orientation parallèle ou antiparallèle à l'aimantation des couches magnétiques. Si les 2 couches sont dans le même état d'aimantation l'effet de résistance sur les spins sera identique (soit les spins des électrons ont la même orientation que les ferromagnétiques et dans ce cas la résistance est très faible, soit le spin est inverse et dans ce cas ils sont très ralentis).

Par contre si les 2 couches ont un état d'aimantation antiparallèle, les 2 types d'électrons vont être ralentis. Il en résulte une résistance au courant différente suivant l'état magnétique des couche : c'est la Magnéto-résistance Géante.



<sup>†</sup>Pour voir une description de spin  $\frac{1}{2}$  macroscopique : <http://jeux-et-mathematiques.davalan.org/geom/spin/sp2.html>







## Résumé

Ce travail porte sur l'étude, l'implémentation et le développement de la Microscopie de Lorentz, appliquée à l'observation de films minces magnétiques à anisotropie perpendiculaire (Fer-Palladium) et aux nanostructures auto-assemblées (Fer et Cobalt) à fermeture de flux. Une présentation exhaustive de tous les différents modes de l'imagerie magnétique dans un Microscope Electronique en Transmission (MET) est réalisée en comparaison avec d'autres techniques de caractérisation magnétique par l'image. Il est notamment présenté ici comment cette microscopie peut être implémentée sur un microscope conventionnel et les divers modes de celle-ci sont comparés par la simulation. La Microscopie de Lorentz permet une analyse à la fois locale et quantitative de la distribution de l'induction magnétique dans et autour des matériaux. Dans le même temps, il est possible d'effectuer des études sous l'application d'un champ magnétique pour déterminer l'évolution de la configuration micromagnétique de la matière. Les alliages Fer-Palladium sont ainsi entièrement caractérisés sous différentes géométries par les méthodes de Differential Phase Contrast, résolution de l'équation de Transport d'Intensité et Holographie électronique. L'étude in-situ permet notamment de caractériser et de suivre des défauts magnétiques : les lignes de Bloch verticales. L'étude de nanostructures (plots de Cobalt et plots de Fer) permet quant à elle de manipuler les différents degrés de libertés magnétiques de systèmes 3D nanostructurés. Il est notamment proposé d'observer des phénomènes de transition entre divers objets du micromagnétisme (vortex, parois de domaines symétriques et asymétriques) ainsi qu'une sélection des degrés de liberté du système par l'application d'un champ.

**MOTS CLÉS** : Microscopie de Lorentz, Holographie Electronique, Imagerie Magnétique, Anisotropie Perpendiculaire, Micromagnétisme, Lignes de Bloch, Degrés de Libertés magnétiques, Nanostructures à fermeture de flux.

## Abstract

This work deals with the implementation and development of Lorentz Microscopy (LTEM) for perpendicular magnetic anisotropy thin foils (FePd) and magnetic flux closure nanostructures (self-assembled Fe and Co dots) analysis. An exhaustive overview of magnetic imaging in a Transmission Electron Microscope (TEM) and its different modes is given with a comparison to other magnetic imaging techniques. A method for implementation of LTEM in a conventional TEM is also described and its various modes are compared by means of simulated images. LTEM allows a local (nanometer scale) and quantitative observation of magnetic induction in and out of the samples. At the same time it is possible to perform in-situ experiments under an applied magnetic field to observe the micromagnetic configuration evolution of the sample. FePd alloys are thus fully characterized with respect to different geometry of the samples with the use of Differential Phase Contrast, Transport of Intensity Equation solving and Electron Holography. The in-situ study especially gives new informations on the films behaviour under applied field by means of Vertical Bloch Lines motion. The study of Fe and Co nanostructures shows how it is possible to control different magnetic degrees of freedom in such magnetic flux-closure configurations. A major point is the control of transition between different micromagnetic objects (vortices, symmetric and asymmetric domain walls) performed with the use of an external magnetic field. This control is thus interpreted in terms of magnetic degree of freedom control in a 3D magnetic structure.

**KEYWORDS** : Lorentz Microscopy, Electron Holography, Magnetic Imaging, Perpendicular Anisotropy, Micromagnetism, Bloch Lines, Magnetic degrees of freedom, Flux-closing nanostructures.