



**HAL**  
open science

# Nanostructure et couplage magnétique dans des couches minces (Pt/Co)<sub>3</sub>/IrMn à anisotropie d'échange perpendiculaire

Amjaad Zarefy

► **To cite this version:**

Amjaad Zarefy. Nanostructure et couplage magnétique dans des couches minces (Pt/Co)<sub>3</sub>/IrMn à anisotropie d'échange perpendiculaire. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université de Rouen, 2011. Français. NNT: . tel-00649328

**HAL Id: tel-00649328**

**<https://theses.hal.science/tel-00649328v1>**

Submitted on 7 Dec 2011

**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.

UNIVERSITÉ DE ROUEN  
UFR des Sciences et Techniques

# Thèse de doctorat

*Discipline : Physique*  
*Spécialité : Sciences des Matériaux*

présentée par

**Amjaad ZAREFY**

Pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE ROUEN

## **Nanostructure et couplage magnétique dans des couches minces $(Pt/Co)_3/IrMn$ à anisotropie d'échange perpendiculaire**

soutenue le 11 avril 2011 devant le jury composé de :

B. DECONIHOUT	Professeur à l'Université de Rouen	Président
A. DINIA	Professeur à l'Université de Strasbourg	Rapporteur
S. MANGIN	Professeur à l'Université de Nancy	Rapporteur
V. BALTZ	Chargé de Recherche au CNRS, Grenoble	Examineur
J-M LE BRETON	Professeur à l'Université de Rouen	Directeur de Thèse
L. LECHEVALLIER	Maître de Conférences à l'Université de Cergy Pontoise	Co-Directeur de Thèse
R. LARDÉ	Maître de Conférences à l'Université de Rouen	Co-Directeur de Thèse





# Remerciements

Cette thèse a été réalisée dans le Groupe de Physique des Matériaux (UMR CNRS 6634) de l'Université de Rouen au sein de l'Equipe de Recherche Magnétisme et Applications (ERMA) et en collaboration avec le laboratoire SPINTEC du CEA de Grenoble. Je tiens à remercier vivement tous ceux qui ont contribué à la réalisation de ce travail ainsi que les personnalités qui ont accepté de l'évaluer.

Mes remerciements les plus respectueux vont tout d'abord à Monsieur le Professeur Didier Blavette, directeur du GPM qui m'a accueillie au sein de son laboratoire.

J'exprime mes plus sincères remerciements à mon directeur de thèse, Monsieur le Professeur Jean-Marie Le Breton, qui m'a chaleureusement accueillie dans son équipe dès mon arrivée en France pour mon master, puis pour ma thèse. Je le remercie pour la confiance qu'il m'a accordée durant toute ma thèse, pour sa sympathie, ses encouragements, le suivi de mon travail et enfin sa disponibilité malgré son emploi du temps souvent très chargé. Son regard critique m'a été très précieux pour structurer mon travail et améliorer la qualité des différents chapitres du manuscrit.

J'adresse ma profonde gratitude à Messieurs Luc Lechevallier et Rodrigue Lardé pour leur encadrement durant mes années de master et de thèse, pour leur constante disponibilité, leur enthousiasme, leurs encouragements et leurs conseils avisés qui m'ont permis de travailler dans les meilleures conditions, j'ai beaucoup appris à leurs côtés. Leur aide m'a été précieuse pour corriger et enrichir mon français, ce qui a largement contribué à l'amélioration de ce manuscrit. Luc, je te remercie chaleureusement pour ta coopération dans la rédaction de nos publications. Rodrigue, je te présente ma reconnaissance pour le temps que tu as consacré à préparer les échantillons au FIB et à m'apprendre les techniques expérimentales utilisées dans ce travail.

Je tiens également à exprimer mes remerciements à Monsieur le Professeur Aziz Dinia de l'Université de Strasbourg ainsi qu'à Monsieur le Professeur Stéphane Mangin de l'Université de Nancy pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail et de participer au jury de ma thèse.

Je tiens tout particulièrement à remercier Monsieur le Professeur Bernard Deconihout qui me fait l'honneur de présider ce jury.

J'adresse toute ma gratitude à Monsieur Vincent Baltz, Chargé de Recherche au laboratoire SPINTEC du CEA de Grenoble, pour avoir accepté d'examiner ce mémoire et pour sa participation à ce jury. Je le remercie également pour sa forte implication dans ce travail, pour l'essentiel de l'élaboration des échantillons étudiés, mais aussi pour les nombreuses discussions enrichissantes que nous avons eues.

J'associe à ces remerciements Messieurs Bernard Rodmacq et Bernard Diény, avec lesquels nous avons débuté notre collaboration avec le CEA de Grenoble.

Je souhaite remercier Monsieur Alain Bostel, pour m'avoir permis de bénéficier de son expérience sur la sonde atomique tomographique, pour les discussions fructueuses que nous avons eues et le travail important que nous avons effectué ensemble.

Je tiens aussi à remercier Maria Gruber pour sa collaboration dans le travail de simulation des analyses de sonde atomique. Je remercie vivement Fabien Cuvilly pour la préparation des pointes au FIB et pour son aide lors de l'utilisation du diffractomètre de rayons X ainsi qu'Hubert Chiron lors des expériences au SQUID. Un grand merci également à Jean Juraszek et Malick Jean pour leur aide lors du traitement des données de réflectométrie et de diffraction de rayons X. Je remercie Sylvain Chambrelaud pour sa disponibilité à résoudre mes problèmes de sonde atomique.

Je ne saurais oublier Béatrice Foulon pour sa sympathie, sa gentillesse et sa générosité. Je remercie également Auriane Etienne, Marie-Ange Derue, Agnès Dalle, Caroline Jorry, Christine Mion, et Cécile Genevois avec lesquelles je me suis sentie comme en famille.

Je tiens enfin à remercier l'ensemble du personnel du GPM qui contribue à nous faciliter au quotidien la vie au laboratoire.

Cette page de remerciements ne pourrait se conclure sans que je remercie vivement ma famille, ma belle famille et en particulier ma mère. Ma thèse et mon diplôme de Doctorat lui auraient fait un si grand plaisir. Je les remercie pour leurs encouragements, ils m'ont toujours aidée et soutenue durant ces années, malgré la distance qui nous sépare et pour bien plus que je ne saurais écrire.

Enfin, je remercie mon cher époux pour sa patience, son soutien quotidien indéfectible et son enthousiasme à l'égard de mes travaux comme de la vie en général, merci de m'avoir permis d'arriver à ce niveau-ci dans ma vie.

Mes remerciements et ma reconnaissance vont également à mon pays, la Syrie, qui m'a permis de terminer ma formation universitaire en France, en me fournissant les ressources nécessaires. Que tous ceux qui ont contribué à faciliter cette étude, dans le cadre qui fut le mien, trouvent ici le témoignage de ma sincère gratitude.



À la mémoire de ma mère

À mon très cher père

À mon très cher mari

À ma chère belle famille

À mes chers frères

À ma chère sœur





# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>22</b>
<b>I Généralités sur l'anisotropie d'échange et ses applications</b>	<b>25</b>
I.1 L'anisotropie d'échange : principes et modèles théoriques . . . . .	26
I.1.1 Modèles macroscopiques . . . . .	28
I.1.1.1 Modèle de Meikeljohn et Bean . . . . .	29
I.1.1.2 Modèle de Néel/Mauri . . . . .	30
I.1.2 Modèles mésoscopiques . . . . .	32
I.1.2.1 Modèle de Malozemoff . . . . .	32
I.1.2.2 Modèle de Takano . . . . .	33
I.1.3 Modèles microscopiques : modèle de Koon . . . . .	34
I.2 L'anisotropie d'échange : structures et applications . . . . .	35
I.2.1 Structures à anisotropie d'échange . . . . .	35
I.2.2 Applications de l'anisotropie d'échange . . . . .	36
I.2.2.1 Magnéto-résistance géante (MRG) et vannes de spin . . . . .	36
I.2.2.2 Magnéto-résistance tunnel (MRT) et jonction tunnel . . . . .	37
I.3 Anisotropie d'échange perpendiculaire : état de l'art . . . . .	40
I.3.1 Multicouches $(Pt/Co)_n$ . . . . .	41
I.3.2 Propriétés des structures $(Pt/Co_{(tCo)})_3/antiferromagnétique$ . . . . .	42
I.3.2.1 Influence de l'épaisseur de la couche de cobalt . . . . .	42
I.3.2.2 Influence du nombre $n$ de répétitions de bicouches $(Pt/Co)$ . . . . .	43
I.3.2.3 Influence de l'insertion d'une couche séparatrice de $Pt$ entre les couches ferromagnétique et antiferromagnétique . . . . .	43
I.3.3 Alliage antiferromagnétique IrMn . . . . .	44
I.4 Objectif de l'étude . . . . .	46
<b>II Techniques expérimentales</b>	<b>49</b>
II.1 Elaboration de couches minces par pulvérisation cathodique . . . . .	50

## Table des matières

II.1.1	Principe de la pulvérisation cathodique . . . . .	50
II.1.2	Paramètres influant sur la morphologie et la microstructure . . . . .	51
II.1.3	Préparation des échantillons . . . . .	52
II.2	Sonde atomique tomographique . . . . .	53
II.2.1	Principe de fonctionnement de la sonde atomique tomographique . . . . .	55
II.2.1.1	Mesure du temps de vol et spectrométrie de masse . . . . .	55
II.2.1.2	Reconstruction 3D du volume analysé . . . . .	56
II.2.2	Sonde atomique assistée par laser femtoseconde . . . . .	58
II.3	Faisceau d'ions focalisé et préparation des pointes . . . . .	59
II.3.1	Principe du FIB . . . . .	59
II.3.2	Préparation des pointes par FIB . . . . .	60
II.3.3	Effet de l'irradiation aux ions $Ga^+$ sur la structure des multicouches . . . . .	62
II.4	Diffraction et réflectométrie de rayons X . . . . .	63
II.4.1	Diffraction de rayons X . . . . .	63
II.4.2	Réflectométrie de rayons X . . . . .	65
II.5	Magnétomètre à SQUID . . . . .	66
<b>III Propriétés magnétiques et nanostructurales</b>		<b>69</b>
III.1	Propriétés magnétiques des multicouches $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_n$ . . . . .	70
III.1.1	Multicouches avec : $t_{Co} = 0,4$ nm et $n = 1$ . . . . .	70
III.1.2	Multicouches avec : $t_{Co} = 0,4$ nm et $n = 7$ . . . . .	71
III.1.3	Multicouches avec : $t_{Co} = 0,6$ nm et $n = 1$ . . . . .	72
III.1.4	Multicouches avec : $t_{Co} = 0,6$ nm et $n = 7$ . . . . .	73
III.2	Caractérisation structurale globale . . . . .	74
III.2.1	Réflectométrie de rayons X aux petits angles . . . . .	74
III.2.1.1	Echantillon sans spacer de $Pt$ . . . . .	75
III.2.1.2	Echantillon avec spacer de $Pt$ . . . . .	78
III.2.1.3	Comparaison des deux échantillons . . . . .	80
III.2.2	Diffraction de rayons X aux grands angles . . . . .	81
III.3	Discussion . . . . .	83
III.3.1	Influence du spacer de $Pt$ sur le champ d'échange . . . . .	84
III.3.2	Influence de l'épaisseur des couches de $Co$ sur le champ d'échange . . . . .	84
III.3.3	Influence sur l'aimantation à saturation . . . . .	85
III.3.4	Influence du nombre de séquences $([Pt_{2nm}/Co_{tCo}]_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm})$ . . . . .	85
III.4	Conclusion du chapitre III . . . . .	87

<b>IV Caractérisation par sonde atomique tomographique</b>	<b>89</b>
IV.1 Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations . . . . .	90
IV.1.1 Conditions des analyses . . . . .	90
IV.1.2 Protocole de reconstruction 3D . . . . .	90
IV.1.3 Profils de concentration . . . . .	94
IV.1.4 Interprétations . . . . .	96
IV.1.4.1 Artefacts inhérents à la sonde atomique . . . . .	97
IV.1.4.1.1 Effet de grandissement local ou " effet de loupe " . . . . .	97
IV.1.4.1.2 Evaporation et rétention préférentielle . . . . .	97
IV.1.4.2 Simulation de l'évaporation de multicouches $(Pt/Co)_3/IrMn$ : effet de loupe . . . . .	99
IV.1.4.2.1 Evaporation d'une couche à bas champ déposée sur une couche à haut champ . . . . .	100
IV.1.4.2.2 Evaporation d'une couche à haut champ déposée sur une couche à bas champ . . . . .	101
IV.1.4.2.3 Evaporation des couches de $Co$ . . . . .	101
IV.1.4.2.4 Reconstruction 3D et profils de concentration . . . . .	103
IV.1.4.3 Modélisation analytique du profil de concentration des couches de $Co$ . . . . .	105
IV.1.4.4 Comparaison modélisation - simulation - expérience . . . . .	109
IV.2 Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$ . . . . .	110
IV.2.1 Couches $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ et $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$	111
IV.2.2 Couches $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/IrMn]_7$ et $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$	114
IV.2.3 Mécanisme de diffusion . . . . .	119
IV.3 Corrélation nanostructure-propriétés magnétiques . . . . .	124
IV.3.1 Champ d'échange $H_E$ . . . . .	124
IV.3.2 Aimantation à saturation $M_S$ . . . . .	125
IV.4 Conclusion du chapitre IV . . . . .	126
<b>Conclusion générale</b>	<b>130</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>138</b>



# Table des figures

I-1	<i>Cycle d'hystérésis, <math>M(H)</math>, d'une bicouche FM/AFM après refroidissement sous champ magnétique. Le champ d'échange <math>H_E</math>, et le champ coercitif <math>H_C</math> sont indiqués sur la figure, [Nog 99a]. . . . .</i>	27
I-2	<i>Représentation schématique de la configuration des spins d'une bicouche FM/AFM à différentes étapes du cycle d'hystérésis. . . . .</i>	28
I-3	<i>Schéma de deux bicouches FM/AFM présentant une interface idéale et une surface AFM non compensée (a) et compensée (b). . . . .</i>	29
I-4	<i>Schéma représentant les paramètres utilisés dans le modèle de Meiklejohn et Bean. . . . .</i>	30
I-5	<i>Schéma représentant la création d'une paroi de domaine parallèle à l'interface dans la couche AFM [Coe 02]. . . . .</i>	31
I-6	<i>Schéma représentatif d'une paroi de domaine dans l'AFM, perpendiculaire à l'interface. La couche AFM est compensée selon le modèle de Malozemoff [Rad 07]. . . . .</i>	33
I-7	<i>Schéma d'une vanne de spin. . . . .</i>	37
I-8	<i>Schéma de principe de lecture et d'écriture de données dans un disque dur. L'écriture consiste à aimanter des domaines magnétiques avec une tête d'écriture inductive. La lecture est effectuée avec un capteur MRG : à chaque transition entre domaines magnétiques, la présence éventuelle d'un champ magnétique de fuite provoque la variation de résistance électrique du capteur transcrit ensuite numériquement en un code 0 ou 1. . . . .</i>	38
I-9	<i>Schéma d'une jonction tunnel. . . . .</i>	39

I-10	<i>Schéma représentant la structure matricielle des MRAM. L'écriture d'un bit nécessite l'établissement d'une impulsion de courant dans les deux lignes (word line et bit line) se croisant au niveau de la cellule mémoire sélectionnée. Les impulsions de courant créent un champ magnétique rayonné qui active la couche libre de la cellule et détermine l'écriture d'un bit 0 ou 1, selon les directions parallèle ou antiparallèle de l'aimantation des deux couches FM. La lecture d'un bit est déduite de la mesure de la résistance de la cellule. . . . .</i>	39
I-11	<i>Cycles d'hystérésis normalisés mesurés par effet Hall extraordinaire à température ambiante, selon la direction perpendiculaire à la surface de l'échantillon pour des multicouches <math>(Pt/Co_{tCo})_3/ IrMn</math> [Bal 05]. . . . .</i>	42
I-12	<i>Evolution des champs d'échange, <math>H_E</math>, et coercitif, <math>H_C</math>, en fonction de l'épaisseur de Co, <math>t_{Co}</math>, pour des multicouches <math>(Pt/Co_{tCo})_3/ IrMn</math> [Bal 05]. . . . .</i>	43
I-13	<i>Cycles d'hystérésis normalisés pour les multicouches <math>(Pt_{(2nm)}/Co_{(0,4nm)})_n/ FeMn_{(13nm)}</math>, pour (a) <math>n = 2</math> et (b) <math>n = 5</math> déduits de [Gar 03]. . . . .</i>	44
I-14	<i>Evolution du champ d'échange, <math>H_E</math>, en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice de Pt, pour un nombre <math>n</math> (2, 3 et 5) de répétitions <math>(Pt/Co)</math> pour les multicouches <math>(Pt_{(20\text{Å})}/Co_{(4\text{Å})})_n/ Pt_{(t)}/ FeMn_{(130\text{Å})}</math> [Gar 03]. . . . .</i>	45
I-15	<i>(a) Structure AFM "triple Q" de l'alliage <math>IrMn_3</math>. (b) Structure de spins correspondant à la surface (111) [Tom 99]. . . . .</i>	46
II-1	<i>Schéma de principe de la pulvérisation cathodique. Un champ magnétique aux abords de la cible permet de canaliser les éléments chargés du plasma à proximité de la cible. . . . .</i>	51
II-2	<i>Présentation synthétique des échantillons analysés. . . . .</i>	53
II-3	<i>Présentation schématique des couches déposées. . . . .</i>	54
II-4	<i>Schéma de principe de la sonde atomique électrique. . . . .</i>	56
II-5	<i>Exemple de spectre de masse obtenu par sonde atomique sur un alliage forcé <math>Cu_{80}Co_{20}</math> [Lar 11]. . . . .</i>	56
II-6	<i>Géométrie pointe-détecteur déterminant les paramètres de projection du microscope à sonde atomique. . . . .</i>	57
II-7	<i>Exemple de reconstruction 3D obtenue après analyse en sonde atomique tomographique d'un alliage forcé <math>Cu_{80}Co_{20}</math> par broyage mécanique. Les échantillons ont été broyés dans une jarre en acier sous atmosphère ambiante expliquant la présence de fer et d'oxygène dans l'alliage [Lar 11]. . . . .</i>	58

II-8	<i>Spectre de masse présentant les pics de Pt et Ir obtenus avec (a) : <math>\lambda = 1030 \text{ nm}</math> (IR) et (b) : <math>\lambda = 515 \text{ nm}</math> (vert).</i>	60
II-9	<i>Substrat constitué d'un réseau de plots de Si.</i>	61
II-10	<i>Préparation d'une pointe, collage de plot.</i>	61
II-11	<i>Usinage d'une pointe par FIB.</i>	62
II-12	<i>Images MEB présentant les séquences observées après usinage.</i>	62
II-13	<i>Reconstructions 3D obtenues après analyse en sonde atomique de pointes préparées par FIB : (a) sans cleaning, et (b) avec clenaing.</i>	63
II-14	<i>Faisceau de rayons X diffracté sur une famille de plans atomiques caractérisés par la distance réticulaire <math>d</math>.</i>	64
II-15	<i>Diffractogramme X d'une poudre de cuivre, chaque pic de diffraction est associé à une famille de plans réticulaires d'indices (hkl).</i>	65
II-16	<i>Diagramme de réflectométrie de rayons X pour la multicouche <math>\text{Si/SiO}_2/\text{Ta}_{3\text{nm}}/[(\text{Pt}_{2\text{nm}}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{IrMn}_{7\text{nm}}]_7/\text{Pt}_{10\text{nm}}</math>.</i>	66
II-17	<i>Principe de fonctionnement du SQUID.</i>	67
III-1	<i>Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons <math>(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{IrMn}</math> et <math>(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{Pt}_{0,4\text{nm}}/\text{IrMn}</math>.</i>	71
III-2	<i>Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons <math>[(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{IrMn}]_7</math> et <math>[(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{Pt}_{0,4\text{nm}}/\text{IrMn}]_7</math>.</i>	72
III-3	<i>Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons <math>(\text{Pt}/\text{Co}_{0,6\text{nm}})_3/\text{IrMn}</math> et <math>(\text{Pt}/\text{Co}_{0,6\text{nm}})_3/\text{Pt}_{0,4\text{nm}}/\text{IrMn}</math>.</i>	73
III-4	<i>Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons <math>[(\text{Pt}/\text{Co}_{0,6\text{nm}})_3/\text{IrMn}]_7</math> et <math>[(\text{Pt}/\text{Co}_{0,6\text{nm}})_3/\text{Pt}_{0,4\text{nm}}/\text{IrMn}]_7</math>.</i>	74
III-5	<i>Courbes expérimentale et ajustée de réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon sans spacer de Pt, (a) : selon le premier modèle (sept séquences identiques) (b) : selon le deuxième modèle (sept séquences différentes).</i>	76
III-6	<i>Courbes expérimentale et ajustée de réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon avec spacer de Pt, (a) : selon le premier modèle (sept séquences identiques) (b) : selon le deuxième modèle (sept séquences différentes).</i>	79
III-7	<i>Diffractogramme de rayons X de la multicouche <math>\text{Ta}_{3\text{nm}}/[(\text{Pt}_{2\text{nm}}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{Pt}_t\text{Pt}/\text{IrMn}_{7\text{nm}}]_n/\text{Pt}_{10\text{nm}}</math> (a) <math>n = 1</math> et (b) <math>n = 7</math>. En insert : déconvolution du pic principal par WinPLOTTR.</i>	82
III-8	<i>Cycles d'hystérésis mesurés à 300K pour les échantillons <math>(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{IrMn}</math>, <math>[(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{IrMn}]_7</math> et <math>[(\text{Pt}/\text{Co}_{0,4\text{nm}})_3/\text{Pt}_{0,4\text{nm}}/\text{IrMn}]_7</math>.</i>	87



## Table des figures

IV-1	<i>Spectre de masse obtenu sur un échantillon [(Pt/Co<sub>tCo</sub>)<sub>3</sub>/Pt<sub>tPt</sub>/IrMn]<sub>7</sub> (a) : pics de Mn et de Co, (b) : pics de Pt et d'Ir. . . . .</i>	91
IV-2	<i>Evolution du potentiel électrique appliqué à la pointe lors de l'analyse d'une multicouche [(Pt/Co<sub>tCo</sub>)<sub>3</sub>/Pt<sub>tPt</sub>/IrMn]<sub>7</sub>. . . . .</i>	92
IV-3	<i>Reconstruction 3D de multicouches [(Pt/Co<sub>tCo</sub>)<sub>3</sub>/Pt<sub>tPt</sub>/IrMn]<sub>7</sub> en appliquant la méthode standard de reconstruction. . . . .</i>	93
IV-4	<i>Reconstruction 3D de multicouches [(Pt/Co<sub>tCo</sub>)<sub>3</sub>/Pt<sub>tPt</sub>/IrMn]<sub>7</sub> en appliquant la méthode " Virtual voltage ". . . . .</i>	93
IV-5	<i>Reconstruction 3D d'une séquence de l'échantillon [(Pt/Co<sub>0,4nm</sub>)<sub>3</sub>/IrMn]<sub>7</sub>. . . . .</i>	94
IV-6	<i>Profils de concentration des atomes de Pt, Co et Mn de l'échantillon [(Pt/Co<sub>0,4nm</sub>)<sub>3</sub>/IrMn]<sub>7</sub> utilisant différentes largeurs de boîtes d'échantillonnage "bloc size". "bloc size" = (a) 0,1 nm, (b) 0,2 nm, (c) 0,3 nm et (d) 0,4 nm, pour un incrément <math>\Delta z = 0,01</math> nm. . . . .</i>	95
IV-7	<i>Profils de concentration d'une séquence de l'échantillon [(Pt/Co<sub>0,4nm</sub>)<sub>3</sub>/IrMn]<sub>7</sub>. . . . .</i>	96
IV-8	<i>Représentation schématique de l'apparition de rayons de courbure locaux engendrés par la présence d'une phase à haut champ d'évaporation (<math>E_p &gt; E_m</math>) et d'une phase à bas champ d'évaporation (<math>E_p &lt; E_m</math>). . . . .</i>	98
IV-9	<i>Diagrammes représentant les cas de l'évaporation optimale, de la rétention préférentielle et de l'évaporation préférentielle. . . . .</i>	98
IV-10	<i>Pointe simulée constituée de couches pures de Pt et Co. . . . .</i>	99
IV-11	<i>Représentation des trajectoires ioniques lors de l'apparition de rayons de courbure locaux dans le cas de l'évaporation d'une couche à bas champ déposée sur une couche à haut champ et variation de la densité d'atomes associée. . . . .</i>	100
IV-12	<i>Représentation des trajectoires ioniques lors de l'apparition de rayons de courbure locaux dans le cas de l'évaporation d'une couche à haut champ déposée sur une couche à bas champ et variation de la densité d'atomes associée. . . . .</i>	102
IV-13	<i>Evolution de la morphologie de la pointe durant l'évaporation et rayons de courbure locaux des couches de Co. . . . .</i>	102
IV-14	<i>(a) Reconstruction 3D simulée des atomes de Co, Pt, Ir et Mn d'une séquence de la multicouche [(Pt/Co<sub>0,4nm</sub>)<sub>3</sub>/IrMn]<sub>7</sub>, (b) Profils de concentration correspondants, (c) Profils de concentration expérimentaux. . . . .</i>	104
IV-15	<i>(a) Fonction <math>h(z)</math> représentant la boîte d'échantillonnage, (b) fonction <math>f(z)</math> représentant le profil réel des couches de Co et (c) produit de convolution <math>g(z)</math> représentant le profil mesuré. . . . .</i>	106

IV-16	Schéma de principe des produits de convolution menant au profil de concentration mesuré des couches $C_{O(1)}$ , $C_{O(2)}$ et $C_{O(3)}$ . . . . .	108
IV-17(a)	Profil $f(z)$ des couches de $Co$ de forme gaussienne, (b) Ajustement du profil expérimental par la fonction $g(z)$ . . . . .	109
IV-18(a)	Profils de concentration obtenus par simulation (couches de $Co$ de forme gaussienne) à partir du modèle de convolution (b) Profils expérimentaux. . . . .	110
IV-19(a)	Projection 2D de la reconstruction 3D ( $7 \times 7 \times 38 \text{ nm}^3$ ) de la multicouche $(Pt/C_{O0,4nm})_3/IrMn$ . (b) Plans atomiques (111) de $Pt$ . . . . .	111
IV-20(a)	Distribution spatiale des atomes de $Co$ et de $Mn$ dans une seule séquence de l'échantillon avec $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ sans spacer et (b) du même échantillon avec spacer. . . . .	112
IV-21(a)	Profils de concentration de $Co$ , $Pt$ et $Mn$ d'une seule séquence des échantillons avec $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ sans spacer de $Pt$ et (b) avec spacer de $Pt$ . (c) et (d) sont les agrandissements des zones correspondant à la couche $C_{O(3)}$ . . . . .	113
IV-22(a)	Profils réels (corrigés) des couches de $Co$ pour les échantillons avec $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ avec et sans spacer de $Pt$ . (b) Profils expérimentaux obtenus par sonde atomique et ajustements correspondants. . . . .	114
IV-23(a)	Projection 2D de la reconstruction 3D ( $6 \times 6 \times 45 \text{ nm}^3$ ) de la multicouche $[(Pt/C_{O0,6nm})_3/IrMn]_7$ et (b) plans atomiques (111) de $Pt$ . . . . .	115
IV-24(a)	Distribution spatiale des atomes de $Co$ et $Mn$ dans une seule séquence de l'échantillon avec $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$ sans spacer de $Pt$ et (b) de l'échantillon avec spacer de $Pt$ . . . . .	115
IV-25(a)	Profils de concentration de $Co$ , $Pt$ et $Mn$ dans une seule séquence des échantillons avec $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$ sans spacer et (b) avec spacer de $Pt$ . (c) et (d) sont les agrandissements des zones correspondants à la couche $C_{O(3)}$ . . . . .	116
IV-26(a)	Profils réels (corrigés) des couches de $Co$ pour les échantillons avec $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$ avec et sans spacer de $Pt$ . (b) Profils expérimentaux obtenus par sonde atomique et ajustements correspondants. . . . .	117
IV-27	Distribution spatiale des atomes de $Co$ et $Mn$ dans une seule séquence des échantillons sans spacer de $Pt$ pour : (a) $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ et (b) $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$ . . . . .	118
IV-28	Profils de concentration de $Co$ , $Pt$ et $Mn$ dans la zone correspondant à la couche $C_{O(3)}$ de l'échantillon : (a) $[(Pt/C_{O0,4nm})_3/IrMn]_7$ et (b) $[(Pt/C_{O0,6nm})_3/IrMn]_7$ . . . . .	119

## Table des figures

---

IV-29	<i>Projections 2D de la reconstruction 3D de la multicouche <math>(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn</math> présentant la distribution spatiale des atomes de Co, Pt, Ir et Mn dans deux séquences : (a) après recuit 1 heure à 300°C et (b) après recuit 1 heure à 400°C.</i>	120
IV-30	<i>Profils de concentration de Co, Pt, Ir et Mn dans la zone correspondant à la couche <math>Co_{(3)}</math> de la multicouche <math>(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn</math> : (a) sans recuit, (b) après recuit 1 heure à 300°C et (c) après recuit 1 heure à 400°C.</i>	121
IV-31	<i>Projections 2D de la reconstruction 3D de la multicouche <math>(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn</math> présentant la distribution spatiale des atomes de Co, Pt, Ir et Mn dans deux séquences : (a) après recuit 1 heure à 500°C et (b) après recuit 1 heure à 700°C.</i>	122
IV-32	<i>Profils de concentration de Co, Pt, Ir et Mn de la multicouche <math>(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn</math> après recuit 1 heure à 700°C.</i>	123

# Liste des tableaux

III-1	Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon sans spacer de $Pt$ mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du premier modèle (sept séquences identiques). . . . .	75
III-2	Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des couches de $Co$ mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon sans spacer de $Pt$ , déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes). . . . .	77
III-3	Valeurs moyennes de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon sans spacer de $Pt$ mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes). . . . .	77
III-4	Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon avec spacer de $Pt$ mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du premier modèle (sept séquences identiques). . . . .	78
III-5	Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des couches de $Co$ mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon avec spacer de $Pt$ , déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes). . . . .	80
III-6	Valeurs moyennes de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon avec spacer de $Pt$ mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes) . . . . .	80
III-7	Position et distance réticulaire des pics observés des échantillons sans spacer de $Pt$ comportant une et sept séquences. . . . .	83
III-8	Valeurs de champ d'échange, $H_E$ , à 5 et 300K pour tous les échantillons analysés.	83
III-9	Valeurs de l'aimantation à saturation $M_S$ , à 5 et 300K pour tous les échantillons analysés. . . . .	84
IV-1	Valeurs des champs d'évaporation . . . . .	99



# **Introduction générale**

Le phénomène d'anisotropie d'échange (exchange bias) a été découvert par Meiklejohn et Bean en 1956 en étudiant des particules ferromagnétiques de  $Co$  recouvertes par leur oxyde antiferromagnétique  $CoO$  [Mei 56]. Il a ensuite été observé dans des bicouches constituées d'une couche antiferromagnétique AFM déposée sur une couche ferromagnétique FM.

Ce phénomène connaît depuis une vingtaine d'années un très grand intérêt dans le domaine de la recherche, en raison de ses applications dans les dispositifs de l'électronique de spin tels que les têtes de lecture de disques durs et les mémoires MRAM (*Magnetic Random Access Memories*). On utilise dans ces dispositifs des vannes de spins et des jonctions tunnels qui se comportent comme des capteurs magnétorésistifs dont le fonctionnement est basé sur le principe de magnétorésistance géante (MRG) ou de magnétorésistance tunnel (MRT).

L'anisotropie d'échange se manifeste d'un point de vue macroscopique par un décalage en champ du cycle d'hystérésis, appelé champ d'échange  $H_E$ , et le renforcement du champ coercitif  $H_C$ . Elle n'apparaît que pour des températures inférieures à la température de Néel du matériau antiferromagnétique. Il est donc nécessaire, dans le cadre des applications, que cette température d'ordre soit nettement supérieure à la température ambiante. Toutefois, d'autres paramètres entrent en jeu comme, notamment, l'anisotropie des matériaux utilisés qui permet de stabiliser le comportement magnétique de la bicouche FM/AFM au cours du temps. Les applications se heurtent en effet à un problème de stabilité de la configuration magnétique des couches AFM pouvant conduire à la disparition des données au cours du temps [Ern 02].

Afin de comprendre les mécanismes microscopiques à l'origine de l'anisotropie d'échange, de nombreux modèles sont venus compléter et améliorer le modèle initial proposé lors de la découverte du phénomène en 1956. De plus, l'anisotropie d'échange est extrêmement sensible à des paramètres tels que les épaisseurs des couches FM et AFM, la rugosité interfaciale et la structure cristalline de l'interface qui sont difficiles à contrôler lors de la préparation des couches minces.

Les premières études traitant de l'anisotropie magnétique d'échange dans des bicouches concernaient des couches FM et AFM à anisotropie planaire. Les études actuelles concernent des multicouches FM/AFM à anisotropie perpendiculaire. La configuration perpendiculaire permet de réduire la taille des jonctions tunnel et des vannes de spins conduisant ainsi à une augmentation de la densité d'intégration des dispositifs de l'électronique de spin et en conséquence à une augmentation de la densité de stockage des MRAM. Elle permet aussi d'augmenter la densité de stockage des supports magnétiques. Parmi les systèmes FM/AFM qui présentent une anisotropie magnétique d'échange perpendiculaire, on peut utiliser les multicouches FM

$(Pt/Co)_n$  ou  $(Pd/Co)_n$  couplées à des composés ou alliages AFM tels que  $FeF_2$ ,  $FeMn$ ,  $IrMn$ ,  $CoO$ ,  $NiO$  [Kim 07, Liu 03a, Maa 01, Mar 03].

L'influence de paramètres structuraux - épaisseur des couches de  $Co$ ,  $Pt$ ,  $Pd$ , ou nombre de répétitions  $(Pt/Co)$  ou  $(Pd/Co)$  - sur l'anisotropie d'échange a été largement étudiée. Il a été suggéré qu'une forte anisotropie magnétique perpendiculaire des multicouches favorise un fort décalage du cycle d'hystérésis [Gar 02, Has 89, Joh 96]. Plusieurs études ont montré que le champ d'échange augmente avec le nombre de répétitions  $(Pt/Co)$  [Has 89, Joh 96]. De plus, il a été observé que pour de très fines épaisseurs de la couche de  $Co$ , l'insertion d'une couche mince de  $Pt$  entre la couche FM et la couche AFM augmente le champ d'échange et le champ coercitif. Cet effet a été attribué à un renforcement de l'anisotropie perpendiculaire du cobalt dû à l'insertion de la couche séparatrice de Pt [Gar 03, Gok 97].

Ce travail de thèse est consacré à la caractérisation de la relation entre structure à l'échelle atomique et propriétés magnétiques de multicouches à anisotropie d'échange perpendiculaire. Une attention particulière a été apportée à la caractérisation structurale à l'échelle atomique de l'interface FM/AFM. Cette interface joue en effet un rôle déterminant dans le phénomène d'anisotropie d'échange. Sa caractérisation structurale est donc d'un intérêt fondamental dans l'étude des propriétés magnétiques de ce type de matériaux. Les multicouches qui font l'objet de notre étude sont composées d'empilements de type  $(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn_{\gamma nm}$  ( $t_{Co}$  et  $t_{Pt}$  étant les épaisseurs de  $Co$  et  $Pt$ ) à anisotropie perpendiculaire. L'étude nanostructurale de ces multicouches a été effectuée à l'aide de la sonde atomique tomographique.

La sonde atomique tomographique a été développée dans le laboratoire, le Groupe de Physique des Matériaux (GPM) de l'Université de Rouen, dans les années 1990 [Bla 93a, Bla 93b]. Cet instrument, équipé d'un spectromètre de masse à temps de vol et d'un détecteur sensible en position, permet d'effectuer une analyse structurale tridimensionnelle des matériaux à l'échelle atomique. Il a été utilisé initialement pour l'étude de matériaux conducteurs. Depuis 2006, une nouvelle génération de sonde atomique assistée par laser femtoseconde permet l'analyse de matériaux fragiles tels que les multicouches magnétiques, les semi-conducteurs ou les matériaux faiblement conducteurs. Cette nouvelle sonde a récemment permis l'analyse de structures multicouches de type vanne de spin [Lar 06]. Elle permet d'obtenir la cartographie en trois dimensions des interfaces présentes dans ces structures, et ainsi d'obtenir des informations sur la chimie de ces interfaces : profil de concentration, rugosité.

Nous avons utilisé la sonde atomique tomographique pour caractériser à l'échelle atomique l'influence d'une petite couche de  $Pt$  appelée spacer, introduite entre la multicouche



$(Pt/Co_{tCo})_3$  et la couche  $IrMn$  sur la structure de l'interface FM/AFM et ceci, pour deux épaisseurs des couches de  $Co$  ( $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm).

Le premier chapitre de ce mémoire traite du phénomène d'anisotropie d'échange et de ses applications dans le domaine de l'électronique de spin. Les résultats des études effectuées sur les multicouches  $(Pt/Co)_n/IrMn$  et publiées dans la littérature y sont également rapportés et discutés.

Le deuxième chapitre présente les différentes techniques expérimentales qui ont été utilisées dans notre étude.

Les mesures magnétiques réalisées sur les multicouches  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  et les caractérisations structurales effectuées par réflectométrie et diffraction de rayons X sont présentées dans le troisième chapitre.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude nanostructurale des multicouches  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  par sonde atomique tomographique. Il comprend trois parties. Dans la première partie sont présentés le procédé de reconstruction des couches, qui tient compte des artefacts de mesure introduits par la sonde, et le modèle utilisé pour obtenir le profil de concentration réel des couches à partir du profil expérimental. Dans la deuxième partie, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus pour toutes les multicouches analysées. La troisième partie est consacrée à la corrélation entre les propriétés magnétiques et les propriétés structurales des multicouches.

## CHAPITRE I

# **Généralités sur l'anisotropie d'échange et ses applications**

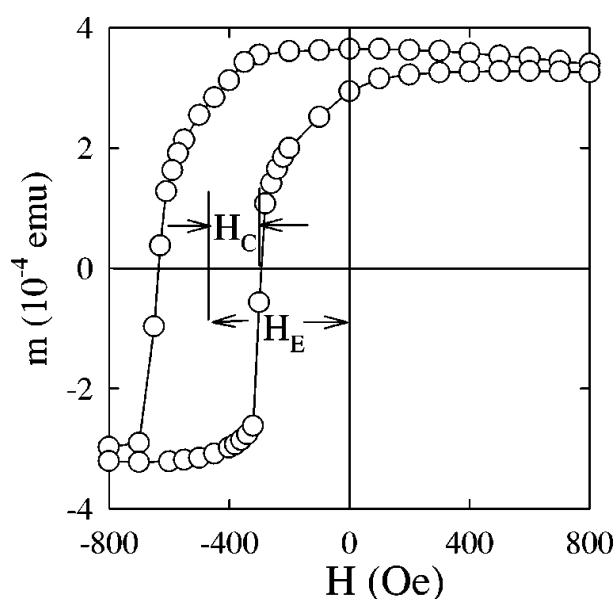
### Introduction

Ce chapitre préliminaire est consacré à la description du phénomène d'anisotropie d'échange (ou "*exchange bias*") et à ses applications dans le domaine de l'électronique de spin, telles que les vannes de spins et les jonctions tunnel. L'effet d'anisotropie d'échange qui apparaît lorsqu'un matériau ferromagnétique (FM) est en contact avec un matériau antiferromagnétique (AFM) suscite depuis une vingtaine d'années un très grand intérêt dû à son utilisation dans le développement de dispositifs de l'électronique de spin [Die 91], comme par exemple les MRAM (*Magnetic Random Access Memories*) ou encore les têtes de lecture magnétorésistives de disques durs. Les efforts de recherche actuels se portent sur des systèmes multicouches FM/AFM à anisotropie perpendiculaire telles que  $[Pt/Co]_n/IrMn$  qui présentent un effet d'anisotropie d'échange à température ambiante. L'anisotropie perpendiculaire, présentée par certaines structures, autorise aujourd'hui la réduction de taille des jonctions tunnel et des vannes de spins et permet ainsi une augmentation de la densité d'intégration des dispositifs de l'électronique de spin.

### I.1 L'anisotropie d'échange : principes et modèles théoriques

Le phénomène d'anisotropie d'échange ("*exchange bias*") a été découvert par Meiklejohn et Bean en 1956 en étudiant les propriétés magnétiques de particules ferromagnétiques de *Co* recouvertes par leur oxyde antiferromagnétique *CoO* [Mei 56, Mei 57]. Il a ensuite été observé dans des bicouches constituées d'une couche antiferromagnétique (AFM) déposée sur une couche ferromagnétique (FM). Il se manifeste par le décalage du cycle d'hystérésis suivant l'axe du champ magnétique. Ce décalage noté  $H_E$  et appelé champ d'échange s'accompagne généralement d'une augmentation de la coercitivité  $H_C$  de la couche FM, figure I-1. Ce phénomène dû à l'anisotropie unidirectionnelle induite par couplage d'échange à l'interface (FM/AFM) entre la couche FM et la couche AFM doit, pour être observé, être induit par un refroidissement sous champ magnétique du système FM/AFM, d'une température supérieure à une température inférieure à la température de Néel de la couche AFM [Nog 99b].

En effet, l'application d'un champ magnétique dans le domaine de température  $T_N < T < T_C$  oriente les moments magnétiques de la couche FM suivant la direction du champ appliqué, tandis que la couche AFM reste paramagnétique (état (a) figure I-2). Lorsque le système est refroidi sous champ jusqu'à une température inférieure à  $T_N$ , les moments magnétiques de la couche AFM s'alignent suivant la direction des moments de la couche FM suivant un ordre AFM (état (b) figure I-2). Dans la pratique, on distingue la température de



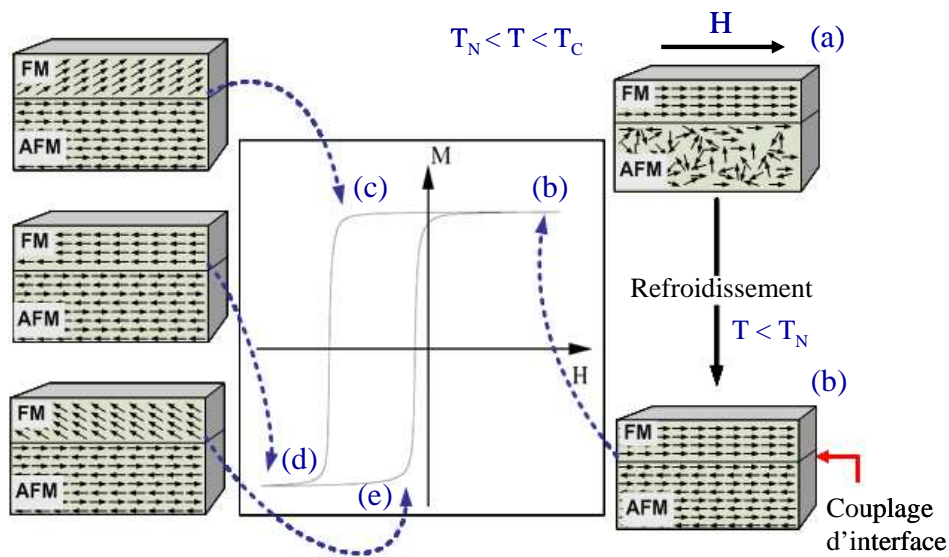
**Figure I-1 :** Cycle d'hystérésis,  $M(H)$ , d'une bicouche FM/AFM après refroidissement sous champ magnétique. Le champ d'échange  $H_E$ , et le champ coercitif  $H_C$  sont indiqués sur la figure, [Nog 99a].

Néel de la température de blocage des spins dont on reparlera ultérieurement.

Lorsque l'on réalise ensuite un cycle d'aimantation, partant de l'état (b), la décroissance puis l'inversion du champ magnétique appliqué provoque un retournement progressif des moments de la couche FM alors que les moments de la couche AFM conservent leur orientation, (état (c), figure I-2). Il y a alors compétition entre l'énergie Zeeman qui tend à aligner l'aimantation FM parallèlement au champ magnétique extérieur appliqué et le couplage d'échange à l'interface FM/AFM qui tend à maintenir les moments FM parallèlement aux moments AFM. En conséquence, ce couplage d'interface augmente la valeur du champ nécessaire pour retourner l'aimantation de la couche FM (état (d), figure I-2). Le champ supplémentaire nécessaire pour vaincre le couple créé entre les moments de l'interface FM/AFM et retourner l'aimantation, est appelé champ d'échange  $H_E$  [Nog 99b]. Lors de la remontée du champ magnétique appliqué, les moments de la couche FM se retournent à une valeur de champ plus faible, (état (e), figure I-2). En effet le couplage d'interface favorise dans ce cas le retournement de l'aimantation de la couche FM.

En général, le champ d'échange  $H_E$  est de sens opposé au champ de refroidissement ( $H_F$ ) caractérisant ainsi un échange négatif [Nog 99b]. Mais, dans certains cas beaucoup moins usuels et pour des champs de refroidissement élevés (exemple des bicouches  $\text{FeF}_2/\text{Fe}$ ),  $H_E$  et  $H_F$  sont de même signe témoignant alors de l'échange positif [Fit 07, Nog 96, Nog 00].

## I.1. L'anisotropie d'échange : principes et modèles théoriques



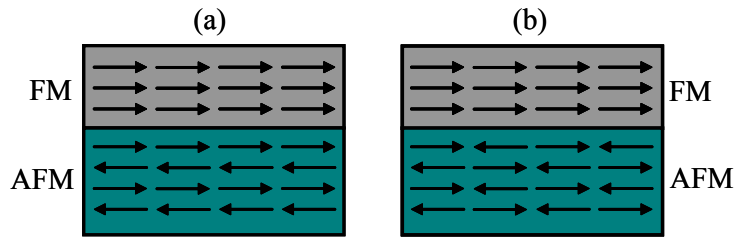
**Figure I-2 :** Représentation schématique de la configuration des spins d'une bicouche FM/AFM à différentes étapes du cycle d'hystérésis.

Les variations de l'intensité du champ de refroidissement  $H_F$  [Nog 96] ou de la température d'utilisation [Hau 06] peuvent aussi induire des variations de  $H_E$ , voire dans certains cas un changement de signe.

Plusieurs modèles théoriques ont été développés pour rendre compte de l'anisotropie d'échange et comprendre les différents mécanismes physiques qui entrent en jeu pour la détermination du champ d'échange. Un grand nombre de ces modèles est rapporté dans la littérature [Ber 99, Kiw 01, Nog 99b, Sta 00, Sti 99]. On peut les classer en trois catégories selon l'échelle d'étude : les modèles macroscopiques, mésoscopiques et microscopiques.

### I.1.1 Modèles macroscopiques

Les modèles macroscopiques ne tiennent pas compte de la structure magnétique fine à l'interface [Coe 02, Nog 05]. Les couches minces sont supposées homogènes et l'interface est considérée comme parfaitement plane, et la surface AFM est non compensée, en d'autres termes la couche AFM présente alternativement des plans d'aimantation  $+M$  et  $-M$ , tous les moments de chaque plan étant orientés suivant la même direction. La figure I-3 présente une interface idéale et une surface AFM non compensée (a) et compensée (b) (pour la structure compensée, chaque plan est d'aimantation nulle).



**Figure I-3 :** Schéma de deux bicouches FM/AFM présentant une interface idéale et une surface AFM non compensée (a) et compensée (b).

### I.1.1.1 Modèle de Meikeljohn et Bean

Le modèle de *Meikeljohn et Bean* est le modèle original le plus simple décrivant l'effet de l'anisotropie d'échange [Mei 56, Mei 57, Mei 62]. Ce modèle est basé sur les hypothèses suivantes :

- l'interface FM/AFM est parfaitement plane et sans rugosité,
- l'anisotropie de la couche AFM au dessous de  $T_N$  est supérieure à l'anisotropie de la couche FM et les moments de la couche AFM sont fixes,
- les matériaux FM et AFM sont monodomaines,
- la surface AFM est parfaitement non compensée,
- l'anisotropie est planaire et les axes d'anisotropies FM et AFM sont colinéaires.

Dans ces conditions, l'énergie par unité de surface s'écrit dans le système CGS [Mei 62] :

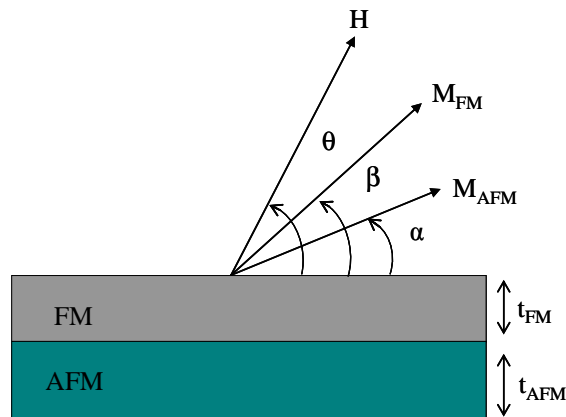
$$E = -HM_{FM}t_{FM} \cos(\theta - \beta) + K_{FM}t_{FM} \sin^2(\beta) + K_{AFM}t_{AFM} \sin^2(\alpha) - J_{INT} \cos(\beta - \alpha) \quad (\text{I-1})$$

où  $H$  est le champ magnétique appliqué,  $M_{FM}$  l'aimantation à saturation de la couche FM,  $t_{FM}$  et  $t_{AFM}$  les épaisseurs respectives des couches FM et AFM,  $K_{FM}$  et  $K_{AFM}$  les constantes d'anisotropie respectives des couches FM et AFM,  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\theta$ , les angles définis à la figure I-4 et  $J_{INT}$  la constante de couplage interfaciale.

Le premier terme de l'équation (I-1) est le terme d'énergie Zeeman provenant de l'interaction entre le champ appliqué et l'aimantation de la couche FM. Le deuxième et troisième termes représentent l'énergie d'anisotropie des couches FM et AFM, respectivement. Le dernier terme correspond à l'énergie d'interaction entre les deux couches.

En supposant que l'anisotropie du FM est négligeable devant celle de l'AFM ( $K_{FM}t_{FM} \ll K_{AFM}t_{AFM}$ ), et que le champ extérieur est appliqué dans le plan de la bicouche ( $\theta = 0$ ), l'expression de l'équation (I-1) devient :

## I.1. L'anisotropie d'échange : principes et modèles théoriques



**Figure I-4 :** Schéma représentant les paramètres utilisés dans le modèle de Meiklejohn et Bean.

$$E = -HM_{FM}t_{FM} \cos(\beta) + K_{AFM}t_{AFM} \sin^2(\alpha) - J_{INT} \cos(\beta - \alpha) \quad (\text{I-2})$$

La minimisation de l'énergie totale du système par rapport à  $\alpha$  et  $\beta$  conduit alors à l'expression du module du champ d'échange  $H_E$  [Mei 62] :

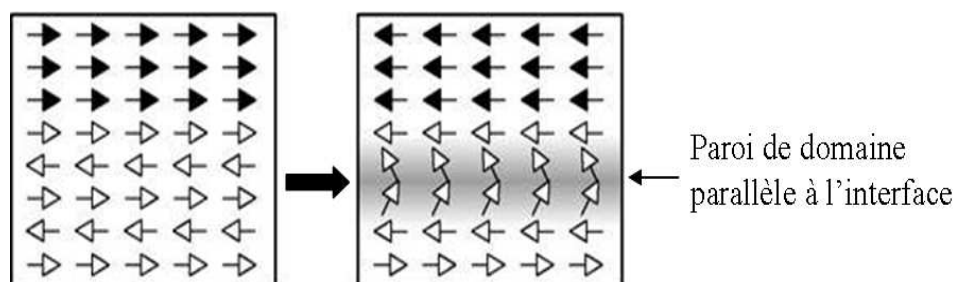
$$H_E = \frac{J_{INT}}{M_{FM}t_{FM}} \quad (\text{I-3})$$

Il est important de préciser que cette anisotropie d'échange n'est observée que si la condition  $K_{AFM}t_{AFM} \geq J_{INT}$  est vérifiée. Si  $K_{AFM}t_{AFM} \gg J_{INT}$ , la couche AFM est rigide et indépendante du mouvement des moments FM pendant le renversement de l'aimantation. Par contre, si  $K_{AFM}t_{AFM} \ll J_{INT}$ , les moments AFM sont entraînés par les moments FM lors du renversement d'aimantation. Dans ce cas, le champ d'échange  $H_E$  est nul, et une augmentation du champ coercitif est observée [Nog 99b]. Ce modèle permet donc une explication qualitative du décalage d'échange. Toutefois, les valeurs du champ d'échange trouvées par ce modèle sont de deux à trois ordres de grandeur supérieures aux valeurs expérimentalement observées [Mei 62, Nog 99b].

### I.1.1.2 Modèle de Néel/Mauri

Afin d'expliquer la différence entre les valeurs de champ d'échange déterminées par le modèle de Meiklejohn et Bean et les résultats expérimentaux, Kouvel [Kou 61] et Néel [Nee 67] puis Mauri et al. [Mau 87] ont proposé la création d'une paroi de domaine énergétiquement plus favorable parallèle à l'interface dans la couche FM ou AFM. Dans ce modèle la structure

AFM n'est plus considérée comme rigide. Lors du renversement d'aimantation de la couche FM certains moments de l'AFM proches de l'interface se réorientent avec les moments FM menant ainsi à la formation d'une paroi de domaine dans la couche AFM parallèle à l'interface, figure I-5.



**Figure I-5 :** Schéma représentant la création d'une paroi de domaine parallèle à l'interface dans la couche AFM [Coe 02].

De plus, *Mauri* a posé les hypothèses suivantes :

- l'interface est idéale, non-compensée et sans rugosité,
- la couche AFM est suffisamment épaisse de façon à permettre l'apparition d'une paroi en son sein,
- l'épaisseur de la couche FM est beaucoup plus petite que l'épaisseur de la paroi de domaine dans la couche FM
- les axes d'anisotropies FM et AFM sont colinéaires,
- l'axe d'anisotropie AFM est parallèle au champ appliqué pendant le processus de refroidissement sous champ.

La désorientation des moments magnétiques dans la couche AFM à l'interface a pour effet de réduire considérablement l'intensité de l'échange à l'interface et donc la valeur du champ  $H_E$ . Des termes relatifs à la formation des domaines magnétiques sont alors ajoutés à l'expression de l'énergie totale dans l'équation (I-1). Tenant compte de la création de parois de domaines dans la couche AFM, l'expression du champ d'échange devient dans le cas d'un fort couplage à l'interface [Mau 87] :

$$H_E = \frac{2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}{M_{FM}t_{FM}} \quad (\text{I-4})$$

où  $A_{AFM}$ , et  $K_{AFM}$  sont respectivement les constantes d'échange et d'anisotropie de la couche AFM.

Le modèle de *Mauri* ne considère la création de parois de domaines que dans l'AFM alors que *Néel* avait suggéré l'existence de telles parois dans l'AFM mais aussi dans le FM. En fait



## I.1. L'anisotropie d'échange : principes et modèles théoriques

la formation des parois de domaines dans le FM, l'AFM ou les deux dépend de la configuration la plus favorable d'un point de vue énergétique [Nog 05]. Il s'ensuit que  $H_E$  peut être aussi déterminé en fonction des constantes d'échange et d'anisotropie de la couche FM par l'expression :

$$H_E \propto \frac{\sqrt{A_{FM}K_{FM}}}{M_{FM}t_{FM}} \quad (\text{I-5})$$

D'autres modèles similaires, tenant compte de la formation de parois de domaines dans le FM ou l'AFM ont été établis plus récemment par de nombreux auteurs afin de déterminer l'anisotropie d'échange (Kiwi *et al.* [Kiw 99], Geshev [Ges 00] ou Kim *et al.* [Kim 00, Kim 05]).

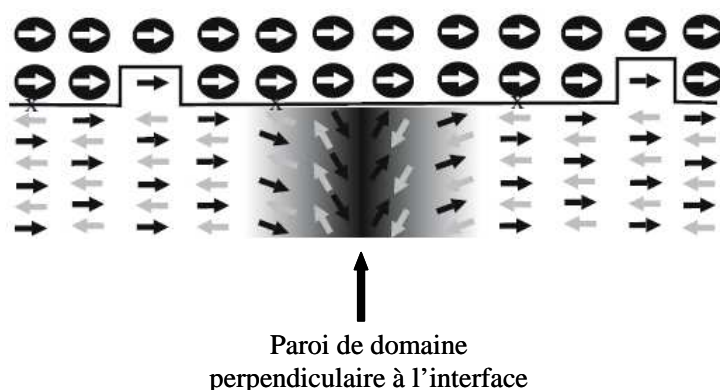
### I.1.2 Modèles mésoscopiques

Les modèles mésoscopiques sont les modèles qui prennent en compte, les variations de la configuration magnétique dans le plan défini par l'interface. Ils tiennent compte de la distribution des moments magnétiques à l'interface qui peut ne pas être homogène.

#### I.1.2.1 Modèle de Malozemoff

Le principal exemple de modèle mésoscopique est le modèle de Malozemoff [Mal 87, Mal 88], qui est basé sur les modèles d'Imry *et Ma* [Imr 75] et de Meiklejohn *et Bean* [Mei 56, Mei 57]. Ce modèle développe une théorie basée sur la rugosité de l'interface FM/AFM et sur l'existence de domaines AFM, déjà suggérée dans les années soixante par Kouvel *et Néel* [Kou 61, Nee 67] et plus récemment par Mauri [Mau 87], permettant d'expliquer l'apparition d'un champ d'échange  $H_E$  quelle que soit la configuration magnétique de l'interface (rugosité, défauts) et la nature compensée ou non compensée de l'AFM.

Malozemoff, dans son modèle, considère un AFM compensé et une interface FM/AFM de forte rugosité représentée par des marches atomiques. Cette forte rugosité et la présence de défauts répartis aléatoirement à l'interface génèrent un champ aléatoire (*random field model*) [Imr 75, Mal 87]. Ce champ entraîne la formation de domaines magnétiques dans la couche AFM avec création de parois de domaines perpendiculaires à l'interface, figure I-6. Ces domaines apparaissent lorsque la couche AFM est refroidie en dessous de sa température de Néel  $T_N$ . Cette configuration résulte du compromis entre le gain d'énergie interfaciale FM-AFM assuré par l'alignement local des moments de l'AFM avec les moments du FM et la perte d'énergie due à la formation de parois de domaines dans l'AFM. Ce modèle est un des modèles permettant de donner une valeur de champ d'échange en accord avec les résultats expérimentaux.



**Figure I-6 :** Schéma représentatif d'une paroi de domaine dans l'AFM, perpendiculaire à l'interface. La couche AFM est compensée selon le modèle de Malozemoff [Rad 07].

Statistiquement, ce sont les moments non compensés à l'interface qui sont responsables du champ d'échange qui s'écrit [Mal 87] :

$$H_E = \frac{2z\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}{\pi^2 M_{FM} t_{FM}} \quad (\text{I-6})$$

où  $z$  représente la coordonnée des atomes de l'AFM à l'interface et caractérise la rugosité de la surface de la couche AFM. Cette expression, proche de celle obtenue par Mauri permet également d'obtenir des valeurs de champ d'échange en accord avec les valeurs expérimentales. Cependant, la différence entre ces deux modèles est que, dans le modèle de Mauri une paroi de domaine parallèle à l'interface se crée dans la couche AFM lors du renversement de la couche FM et peut disparaître pour de faibles valeurs d'anisotropie  $K_{AFM}$  ou de constante d'échange  $A_{AFM}$ , alors que dans le modèle de Malozemoff, les parois de domaines sont perpendiculaires à l'interface et indépendantes du retournement de l'aimantation de la couche FM.

### I.1.2.2 Modèle de Takano

Plusieurs modèles font intervenir différentes structures de la couche AFM, comme une distribution de moments non compensés, une distribution de la taille des grains ou une distribution de l'anisotropie [Nog 05]. Le modèle de Meiklejohn et Bean suggère que l'anisotropie unidirectionnelle est une conséquence de la présence des moments non compensés à l'interface AFM. Takano et al. [Tak 97] ont montré expérimentalement une corrélation entre des moments non compensés à la surface d'une couche AFM et le champ d'échange dans le système FM/AFM

## I.1. L'anisotropie d'échange : principes et modèles théoriques

*Permalloy/CoO.*

Le modèle de *Takano*, basé sur le calcul de la densité de moments interfaciaux non compensés prédit l'amplitude correcte du champ d'échange. Les auteurs montrent que les mesures d'aimantation sous champ et sans champ (FC, ZFC) effectuées de  $350K$  à  $10K$ , d'échantillons  $CoO_{10,3nm}/MgO_{3nm}$  mettent en évidence deux contributions magnétiques, l'une de volume et l'autre interfaciale. Des mesures de diffraction de neutrons leur permettent d'établir que le nombre de moments interfaciaux non compensés de *Co* ne représente que 1 % des moments de *Co* de la couche *CoO*. Ces mêmes auteurs montrent que les courbes représentant la variation de  $H_E$  en fonction de la température (entre  $350K$  et  $10K$ ) de bicouches  $NiFe_t/CoO$  (pour  $t$  variant de 10 à 300 nm) sont parfaitement corrélées aux courbes (ZC, ZFC). Ceci leur permet alors de suggérer une relation étroite entre la densité de moments non compensés dans la couche AFM *CoO* et l'intensité du champ d'échange et ensuite de quantifier les valeurs de  $H_E$ .

### I.1.3 Modèles microscopiques : modèle de Koon

Les modèles microscopiques tiennent compte des moments de chaque atome ou groupes d'atomes, non seulement à l'interface mais aussi dans tout le volume du système. Les auteurs utilisent en général des simulations Monte Carlo ou des calculs micromagnétiques afin de déterminer les configurations de spins d'énergie minimale.

Le modèle de *Koon*, basé sur des résultats de simulations numériques, traite d'AFM compensé de structure AFM rigide [Koo 97]. Les moments AFM sont initialement dans le volume à  $90^\circ$  des moments du FM. Du fait du couplage interfacial, les moments de l'AFM situés à l'interface tournent très légèrement suivant la direction des moments du FM, les moments situés dans le volume conservant leur orientation initiale (AFM rigide). Les moments à l'interface sont frustrés par la compétition entre les interactions d'échange AFM entre les deux sous-réseaux d'une part et FM d'autre part. Le plan de l'AFM situé à l'interface n'est plus alors totalement compensé et présente de ce fait une aimantation planaire non nulle. Il en résulte alors un champ d'échange  $H_E$ .

Cette structure perpendiculaire a été mise en évidence dans de nombreuses bicouches telles  $FeMn - NiFe$ ,  $CoO - Fe_3O_4$  ou  $CoO - NiFe$ . Il semble que dans le cas de  $FeF_2 - Fe$ , l'orientation antiparallèle ( $180^\circ$ ) entre les moments de l'AFM et du FM situés à l'interface soit à l'origine du champ d'échange positif [Nog 96, Nog 99a, Nog 00].

Tous ces modèles montrent que le phénomène d'anisotropie d'échange est lié à la structure magnétique de l'interface. En outre, les modèles dont les valeurs théoriques de  $H_E$  se rapprochent le plus des valeurs expérimentales suggèrent que la distribution des moments ma-

---

gnétiques à l'interface n'est pas homogène. On peut aussi s'interroger sur les effets de la nature chimique de l'interface (interface diffuse ou non), des joints de grains et des couplages entre les grains sur les valeurs de  $H_E$ , effets dont ne rendent pas compte les modèles présentés.

## I.2 L'anisotropie d'échange : structures et applications

### I.2.1 Structures à anisotropie d'échange

Comme il a déjà été mentionné, le phénomène d'anisotropie d'échange a été observé, pour la première fois, sur des matériaux de type nanoparticules. Depuis sa découverte par *Meiklejohn et Bean*, ce phénomène a été observé sur un certain nombre de matériaux, constitués de particules FM recouvertes par leur oxyde natif AFM ou ferrimagnétique comme  $Co - CoO$  [Mei 56],  $Ni - NiO$  [Lof 97],  $Fe - FeO$  [Mei 58]. Dans ce type de matériaux, il est difficile de déterminer l'épaisseur exacte des cœurs FM et des revêtements AFM et donc de comparer quantitativement les résultats entre les différents systèmes. D'autre part, à cause des distributions de taille et de forme des particules et de la difficulté à caractériser l'interface, ce type de système n'est pas idéal pour une étude fondamentale du phénomène de couplage d'échange.

L'anisotropie d'échange est en fait beaucoup plus étudiée dans des nanostructures constituées de couches minces présentant une interface plane FM/AFM (bicouches magnétiques). Dans ces structures, il est d'une part beaucoup plus facile de contrôler et de caractériser les épaisseurs des différentes couches ainsi que l'interface FM/AFM. D'autre part, ces structures sont à la base du développement des vannes de spins et des jonctions tunnel. Parmi l'ensemble des systèmes, les interfaces FM/AFM sont généralement les plus étudiées, toutefois les bicouches telles que FM/Ferri [Cai 90], Ferri/AFM [Zaa 95], Ferri/Ferri [Tok 90] ont été également étudiées. Le système FM/AFM peut être divisé en plusieurs catégories selon le type de matériau utilisé pour la couche AFM.

De nombreuses études ont été effectuées sur des bicouches constituées d'une couche AFM d'oxyde, telle  $CoO$ ,  $NiO$ ,  $FeO$  et d'une couche FM du métal de transition associé,  $Co$ ,  $Ni$  et  $Fe$ . On trouve donc dans la littérature des travaux sur les systèmes FM/AFM suivants :  $Co/CoO$ ,  $Ni/NiO$  [Sch 68, Sma 92] et  $Fe/FeO$  [Lin 94]. Comme pour les particules, les bicouches  $Co/CoO$  présentent un décalage du cycle d'hystérésis plus grand que les bicouches  $Ni/NiO$  et  $Fe/FeO$ . Pour les applications, ces AFM à base d'oxyde ont été délaissés en raison de leur température de Néel trop basse (inférieure à ou proche de l'ambiante) au profit de couches AFM métalliques telles que  $FeMn$  ou  $IrMn$  aux températures de Néel beaucoup

## I.2. L'anisotropie d'échange : structures et applications

plus élevées (supérieures à 200 °C).  $FeMn$  a été l'un des systèmes les plus étudiés parmi les films minces AFM, et fut jusqu'à récemment très utilisé dans les dispositifs vannes de spins.  $IrMn$ , qui possède une température de Néel aussi élevée, tend aujourd'hui à le remplacer en raison d'une meilleure résistance à la corrosion [Dij 05, Nog 99b].

### I.2.2 Applications de l'anisotropie d'échange

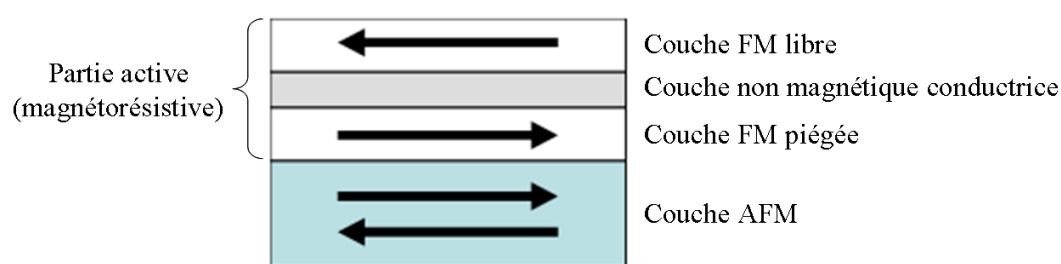
Le phénomène d'anisotropie d'échange a permis la conception de dispositifs d'électronique de spin [Teh 03], tels que les vannes de spin et les jonctions tunnel où il permet de "bloquer" l'aimantation d'une des deux électrodes ferromagnétiques qui les constituent. Ces deux composants sont à la base de l'électronique de spin et sont aujourd'hui utilisés pour la conception de capteurs de champ magnétique (têtes de lecture de disques durs) et de mémoires magnétiques non volatiles à accès aléatoire (MRAM : *magnetic random access memory*)

#### I.2.2.1 Magnétorésistance géante (MRG) et vannes de spin

La MRG a été découverte en 1988 dans des multicouches constituées d'un empilement alterné de couches magnétiques de fer et de couches non magnétiques de chrome, par les équipes d'Albert Fert à Orsay en France [Bai 88], et de Peter Grünberg à Jülich en Allemagne [Bin 89]. Cette découverte leur a valu le prix Nobel de Physique en 2007. Dans ces multicouches les aimantations des couches de Fe sont alignées antiparallèlement en champ nul, un couplage antiparallèle apparaissant entre les couches de Fe à travers le Cr [Die 00, Heh 02]. En appliquant un champ magnétique, les aimantations des couches de fer tournent progressivement en direction du champ appliqué et s'alignent toutes parallèlement dans sa direction lorsqu'il devient supérieur au champ de saturation. Ce changement d'orientation relative des aimantations dans les couches magnétiques successives s'accompagne d'une diminution de la résistance électrique de la multicouche. Il a été observé que la résistance est plus faible lorsque les aimantations des couches de Fe sont parallèles que lorsqu'elles sont antiparallèles. Ce phénomène résulte essentiellement de la diffusion dépendante du spin aux interfaces couche ferromagnétique/couche non magnétique.

Cette propriété a permis le développement dans les années 90 de capteurs de champ magnétique de haute sensibilité appelés vannes de spin [Die 91]. Une vanne de spin est une structure multicouche, figure I-7, dont la partie active, c'est-à-dire magnétorésistive, est constituée de deux couches FM séparées par une couche conductrice non magnétique d'épaisseur suffisante pour que le couplage entre les deux couches magnétiques soit faible. Afin de "bloquer ou piéger" l'aimantation de l'une des couches FM, une couche AFM est ajoutée. Ainsi, grâce à

l'anisotropie d'échange due à l'interaction à l'interface FM/AFM, la coercitivité de la couche FM en contact avec la couche AFM est augmentée. On obtient alors une couche dite "libre" de coercitivité faible dont l'aimantation pourra se retourner à faible champ et une couche dite "piégée" de coercitivité plus élevée dont l'aimantation sera fixe à faible champ. Dans ce type de structure, c'est donc uniquement le retournement de l'aimantation de la couche FM "libre" lors de l'application de champs faibles qui provoquera la variation de résistance électrique.



**Figure I-7 :** Schéma d'une vanne de spin.

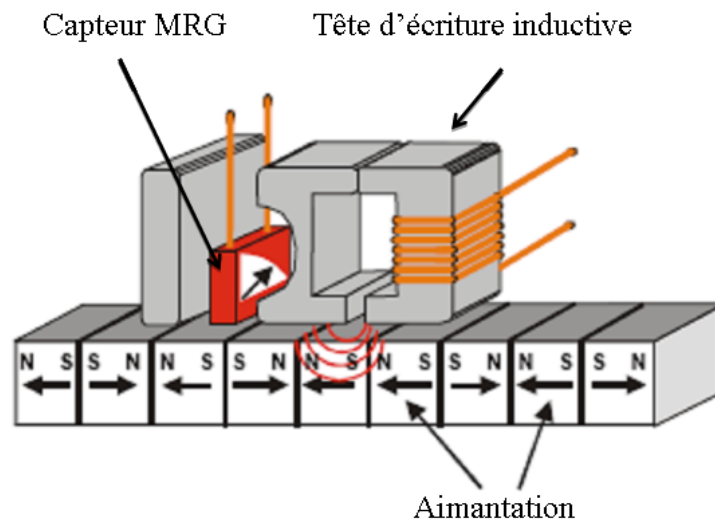
Ce type de capteurs de haute sensibilité est utilisé dans de nombreux domaines. L'impact le plus important est sans aucun doute lié à leur utilisation pour la constitution de têtes de lecture des disques durs de nos ordinateurs. En effet, leur intégration en 1996 a permis une augmentation considérable de la densité de stockage dans le domaine de l'enregistrement magnétique.

Dans un disque dur, les données sont stockées sous forme binaire "0" et "1", ces bits correspondent physiquement à des domaines magnétiques dont l'aimantation peut prendre deux orientations. L'écriture des données s'effectue par aimantation d'un support magnétique grâce à une tête d'écriture inductive. La lecture des données est réalisée par détection ou non d'un champ magnétique de fuite au niveau de la transition entre deux domaines magnétiques. La sensibilité des capteurs magnétorésistifs (MRG) permet de détecter des champs magnétiques extrêmement faibles. Il en résulte que la taille des domaines magnétiques, c'est-à-dire la taille des bits d'information a pu être réduite. Ceci explique l'augmentation de la densité de stockage observée à partir des années 90. La figure I-8 présente le principe de lecture et d'écriture de données dans un disque dur.

### I.2.2.2 Magnétorésistance tunnel (MRT) et jonction tunnel

Un effet de magnétorésistance similaire à la magnétorésistance géante, appelé magnétorésistance tunnel, a été observé dans des jonctions tunnel, FM/semiconducteur/FM [Jul 75] et FM/isolant/FM [Moo 95]. Ces jonctions présentent de fortes similitudes avec les vannes de

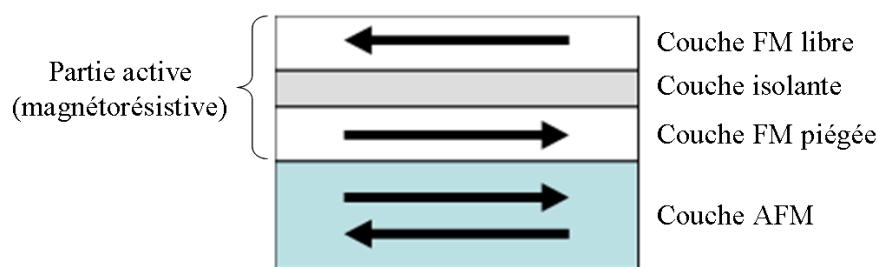
## I.2. L'anisotropie d'échange : structures et applications



**Figure I-8 :** Schéma de principe de lecture et d'écriture de données dans un disque dur. L'écriture consiste à aimanter des domaines magnétiques avec une tête d'écriture inductive. La lecture est effectuée avec un capteur MRG : à chaque transition entre domaines magnétiques, la présence éventuelle d'un champ magnétique de fuite provoque la variation de résistance électrique du capteur transcrit ensuite numériquement en un code 0 ou 1.

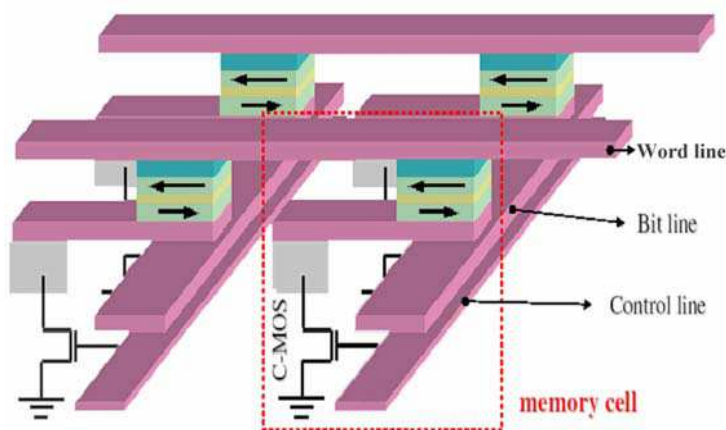
spin. Elles sont constituées de deux couches conductrices FM (une libre et une piégée) séparées par une fine barrière isolante, figure I-9. Dans cette structure la circulation des électrons est réalisée par effet tunnel à travers l'isolant. Lorsque les aimantations des deux couches magnétiques sont parallèles, les électrons franchissent plus facilement la barrière que lorsque les aimantations sont antiparallèles. Il en résulte une différence de conductance de la barrière entre ces deux configurations magnétiques. L'amplitude de cette magnétorésistance est beaucoup plus élevée que la magnétorésistance géante observée dans les vannes de spin [Die 00, Heh 02]. La jonction tunnel est donc un système à deux états (état de résistance élevée et état de résistance faible) utilisé aujourd'hui comme capteur magnétorésistif dans les têtes de lecture et comme cellule de stockage dans les mémoires magnétiques non volatiles à accès aléatoire. Dans ces mémoires, appelées MRAM (*Magnetic Random Acces Memory*), l'information n'est plus stockée par des charges électriques dans des capacités, comme c'est le cas des mémoires semi-conductrices de type DRAM ou Flash, mais par la direction de l'aimantation de la couche FM libre de chaque jonction tunnel magnétique. La figure I-10 présente la structure matricielle de certaines MRAM.

Les deux dispositifs présentés précédemment, nécessitent un couplage d'échange à l'interface FM/AFM le plus élevé possible aux températures de fonctionnement afin de piéger de



**Figure I-9 :** Schéma d'une jonction tunnel.

manière suffisante l'aimantation de la couche FM en contact avec la couche AFM. Dans les têtes de lecture la température de fonctionnement peut atteindre  $100^{\circ}\text{C}$ . Cela nécessite donc l'utilisation de matériaux AFM présentant des températures de blocage très élevées de l'ordre de  $250$  à  $300^{\circ}\text{C}$ , tels que  $FeMn$  ou  $IrMn$  et ayant aux températures de fonctionnement un couplage d'échange FM/AFM suffisant. D'autres contraintes telles que la valeur de la résistivité sont aussi à prendre en compte dans la réalisation des capteurs MRG et MRT utilisés dans les têtes de lecture et les MRAM [Die 04].



**Figure I-10 :** Schéma représentant la structure matricielle des MRAM. L'écriture d'un bit nécessite l'établissement d'une impulsion de courant dans les deux lignes (word line et bit line) se croisant au niveau de la cellule mémoire sélectionnée. Les impulsions de courant créent un champ magnétique rayonné qui active la couche libre de la cellule et détermine l'écriture d'un bit 0 ou 1, selon les directions parallèle ou antiparallèle de l'aimantation des deux couches FM. La lecture d'un bit est déduite de la mesure de la résistance de la cellule.



## I.3 Anisotropie d'échange perpendiculaire : état de l'art

Les premières études traitant de l'anisotropie magnétique d'échange concernaient des couches FM et AFM à anisotropie planaire (les directions des spins étant dans le plan des couches). Aujourd'hui l'utilisation de couches FM et AFM à anisotropie perpendiculaire au plan des couches permet d'induire un couplage d'échange perpendiculaire entre la couche FM et la couche AFM [Gar 03, Liu 03a, Liu 03b, Maa 01, Sor 04a]. Ce couplage est très intéressant d'un point de vue technologique car il permet de concevoir des dispositifs d'électronique de spin (tête de lecture ou MRAM) à anisotropie perpendiculaire, utilisés pour la lecture ou le stockage de cellules magnétiques, de taille réduite, et ainsi d'augmenter la densité de stockage.

Parmi les systèmes FM/AFM qui présentent une anisotropie magnétique d'échange perpendiculaire, les multicouches FM  $(Pt/Co)_n$  ou  $(Pd/Co)_n$  peuvent être associées à des alliages AFM  $FeF_2$ ,  $FeMn$ ,  $IrMn$ ,  $CoO$ ,  $NiO$  [Kim 07, Liu 03a, Maa 01, Mar 03]. L'anisotropie d'échange reste liée à l'interaction entre les spins des couches FM et AFM situés à l'interface mais dépend aussi de l'angle entre les spins FM et AFM. Plus les spins sont alignés, plus l'angle est faible et plus  $H_E$  est élevé [Nog 99a].

L'influence de différents paramètres, tels que l'épaisseur des couches de  $Co$ ,  $Pt$  ou  $Pd$ , et le nombre de répétitions  $(Pt/Co)$  ou  $(Pd/Co)$  sur l'anisotropie d'échange a été largement étudiée. Il a été suggéré qu'une forte anisotropie magnétique perpendiculaire favorise un fort décalage du cycle d'hystérésis et devient maximale lorsque le cycle d'hystérésis a un aspect carré [Gar 02, Has 89, Joh 96]. Plusieurs études ont montré que le champ d'échange augmente avec le nombre de répétitions  $(Pt/Co)$ . Dans le cas où la couche FM est une multicouche  $(Co/Pt)$ , pour de très fines épaisseurs de la couche de  $Co$ , l'insertion d'une couche mince de  $Pt$  augmente le champ d'échange ainsi que le champ coercitive [Gar 03]. Cet effet a été attribué à un renforcement de l'anisotropie perpendiculaire du cobalt dû à l'insertion de la couche séparatrice de  $Pt$ .

Les multicouches qui font l'objet de notre étude sont composées d'empilements de type  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  ( $t_{Co}$  et  $t_{Pt}$  étant les épaisseurs de  $Co$  et  $Pt$ ) à anisotropie perpendiculaire. On présente dans ce paragraphe les propriétés structurales et magnétiques des matériaux utilisés et l'influence de différents paramètres sur l'anisotropie d'échange, tels que, l'épaisseur de la couche de  $Co$ , le nombre de répétitions  $(Pt/Co)$  et la présence d'une couche séparatrice de  $Pt$  entre la multicouche  $(Pt/Co)$  et la couche  $IrMn$ .

### I.3.1 Multicouches $(Pt/Co)_n$

Les propriétés structurales et magnétiques des multicouches  $(Pt/Co)_n$  (mais aussi  $(Pd/Co)_n$ ) ont fait l'objet de nombreuses études depuis une vingtaine d'années [Ber 94, Ber 95, Cho 92, Her 91, Joh 96, Kim 96, Li 92, Nak 98] en raison de l'anisotropie perpendiculaire au plan des couches qu'elles présentent dans certaines conditions (épaisseurs de  $Pt$  et  $Co$  et nombre de répétitions  $(Pt/Co)$ ), et donc de l'intérêt technologique qui en résulte, notamment pour l'enregistrement magnétique à anisotropie perpendiculaire. L'intérêt technologique, senti dès la fin des années 1990 [Die 99] avait été précédé par de nombreuses études fondamentales [Ber 94, Cho 92, Her 91, Nak 98]. Ces multicouches ont ensuite été associées à des couches AFM dans le cadre de travaux concernant le phénomène d'anisotropie d'échange.

Les multicouches  $(Pt/Co)_n$  sont généralement déposées par pulvérisation cathodique bien que quelques unes l'aient été aussi par MBE [Cho 92, Her 91]. Par pulvérisation cathodique, elles furent réalisées sous différentes atmosphères ( $Ar$ ,  $Kr$ ,  $Xe$ ). Généralement, l'argon est le gaz le plus utilisé.

Les multicouches  $(Pt/Co)_n$  sont de structure cfc tant que la couche de  $Co$  n'excède pas six à huit monocouches. Au-delà de cette épaisseur, le cobalt transite de la structure cfc à la structure hcp qui est celle du massif [Nak 98]. En deçà de cette épaisseur ces multicouches présentent une texture (111) qui peut légèrement différer selon le gaz de pulvérisation [Ber 95, Li 92, Mat 03]. Un mélange  $PtCo$  d'environ une monocouche est observé à chaque interface qui conduit, pour des épaisseurs de  $Co$  inférieures à 1,5 monocouche, à des structures fortement diffuses ou des couches de  $Pt$  succèdent à des alliages  $Pt-Co$  [Cho 92]. Au-delà de 2,3 monocouches de  $Co$  et en dépit d'un mélange interfacial, l'alternance  $Pt/Co$  est retrouvée [Nak 98].

L'anisotropie perpendiculaire au plan est un phénomène qui résulte de l'hybridation entre les atomes des couches 5d de  $Pt$  et 3d de  $Co$  à l'interface  $Pt/Co$ . Cette hybridation a pour effet d'induire un moment orbital sur les atomes de  $Pt$  du premier plan, évalué à  $0,5 \mu_B$  par atome qui décroît exponentiellement pour les plans supérieurs [Ber 95]. Le moment orbital induit des atomes de  $Pt$  de l'interface est aligné parallèlement au moment des atomes de  $Co$  [Nak 98]. L'anisotropie perpendiculaire est observée dans les multicouches  $(Pt/Co)_n$  où l'épaisseur de  $Co$  n'excède pas 5 monocouches. Ce phénomène est donc d'autant plus marqué que l'aspect interfacial de la multicouche prévaut devant l'aspect volumique et donc que le nombre de répétitions de la bicouche  $(Pt/Co)$  est élevé. Elle est fortement réduite lorsque le mélange  $PtCo$  interfacial est important [Kim 96].

L'anisotropie perpendiculaire dans ces bicouches dépend donc des épaisseurs respectives des couches de  $Pt$  et  $Co$ , du nombre de répétitions  $n$  de la bicouche  $(Pt/Co)$  mais aussi de

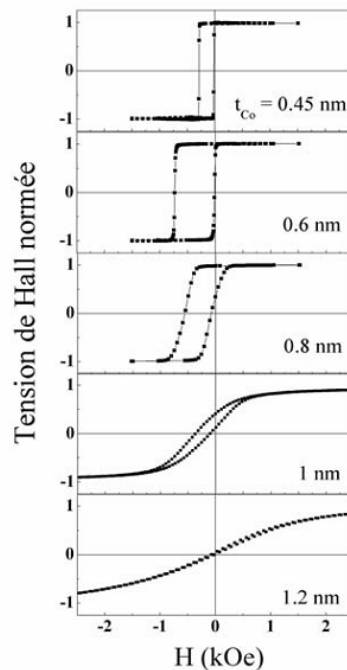
### I.3. Anisotropie d'échange perpendiculaire : état de l'art

la nature de la couche sur laquelle les multicouches  $(Pt/Co)_n$  sont déposées [Has 89, Joh 96, Kan 08].

#### I.3.2 Propriétés des structures $(Pt/Co_{(t_{Co})})_3/anti\ ferromagnétique$

##### I.3.2.1 Influence de l'épaisseur de la couche de cobalt

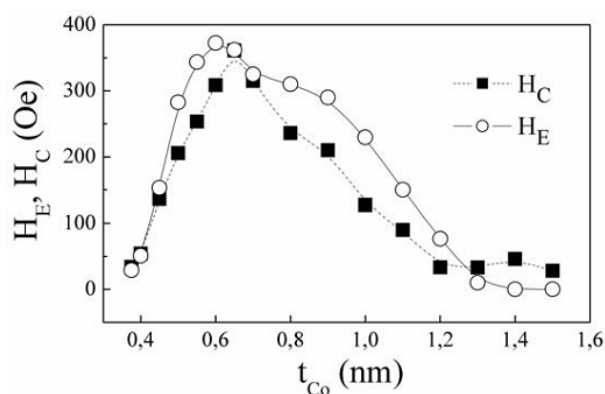
Des mesures de cycles d'hystérésis dans la direction perpendiculaire au plan des couches ont été réalisées dans des échantillons  $(Pt_{(2nm)}/Co_{(t_{Co})})_3/IrMn_{(5nm)}$  en fonction de l'épaisseur de  $Co$  (avec  $t_{Co} = 0,45, 0,6, 0,8, 1$  et  $1,2$  nm) [Bal 05, Lan 01]. On remarque (figure I-11) que pour de faibles épaisseurs de cobalt ( $t_{Co} = 0,45, 0,6$  nm) les cycles sont relativement carrés.



**Figure I-11 :** Cycles d'hystérésis normalisés mesurés par effet Hall extraordinaire à température ambiante, selon la direction perpendiculaire à la surface de l'échantillon pour des multicouches  $(Pt/Co_{t_{Co}})_3/IrMn$  [Bal 05].

Pour  $t_{Co} = 0,8$  nm, le cycle est incliné, et pour des valeurs d'épaisseur plus élevées ( $t_{Co} = 1$  et  $1,2$  nm), les cycles sont inclinés et caractéristiques de cycles mesurés selon un axe de difficile aimantation. Lorsque l'épaisseur de la couche de  $Co$  augmente, le système passe progressivement d'une configuration où l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche à une configuration où l'aimantation est planaire [Sor 05a]. Les valeurs des champs d'échange  $H_E$  et coercitifs  $H_C$  déduites des cycles d'hystérésis sont représentées en fonction de l'épaisseur de la couche de  $Co$  sur la figure I-12. On observe que  $H_E$  et  $H_C$  sont maximums pour des

épaisseurs intermédiaires de cobalt (celles qui présentent un cycle carré) et diminuent continûment lorsque l'épaisseur augmente [Bal 05, Sor 05a]. Ces valeurs maximales de  $H_E$  et  $H_C$  sont donc obtenues pour des couches présentant une anisotropie perpendiculaire maximale.



**Figure I-12 :** Evolution des champs d'échange,  $H_E$ , et coercitif,  $H_C$ , en fonction de l'épaisseur de Co,  $t_{Co}$ , pour des multicouches  $(Pt/Co_{tCo})_3/IrMn$  [Bal 05].

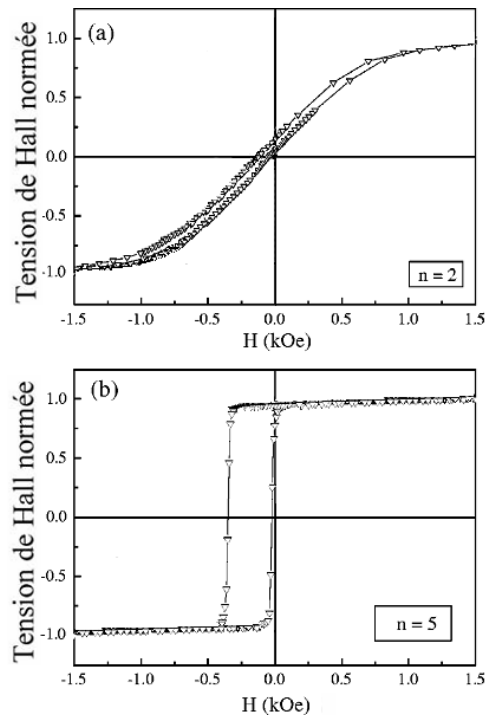
### I.3.2.2 Influence du nombre $n$ de répétitions de bicouches $(Pt/Co)$

Il a été observé que l'anisotropie d'échange perpendiculaire dépend du nombre  $n$  de répétitions  $(Pt/Co)$  dans les multicouches  $(Pt/Co)_n$ , [Has 89, Joh 96]. Elle augmente avec le nombre  $n$  de répétitions  $(Pt/Co)$  et devient maximale quand le cycle d'hystérésis, présente une rectangularité optimale, figure I-13. Garcia et al. [Gar 03] ont montré que le système  $(Pt/Co)_n/FeMn$  présente une évolution du cycle d'hystérésis d'axe difficile à axe facile lorsque l'on augmente le nombre  $n$  de répétitions de bicouches  $(Pt/Co)$  de 2 à 5. Ceci est dû à l'augmentation de l'effet d'anisotropie perpendiculaire induite par les interfaces  $(Pt/Co)$ .

### I.3.2.3 Influence de l'insertion d'une couche séparatrice de $Pt$ entre les couches ferromagnétique et antiferromagnétique

Dans les multicouches FM  $(Pt/Co)_n$  couplées à une couche AFM  $IrMn$  ou  $FeMn$ , il a été observé que l'insertion d'une couche mince de  $Pt$  entre la dernière couche de cobalt et la couche AFM augmente le couplage d'échange et par conséquent le champ d'échange  $H_E$  [Gar 03, Sor 04b]. Cette couche mince de  $Pt$  (appelée spacer) a pour effet de renforcer l'anisotropie perpendiculaire de la dernière couche de cobalt et par conséquent d'augmenter le couplage d'échange entre la couche FM et la couche AFM [Bal 05, Gar 03, Sor 04b]. D'autres auteurs ont montré que le phénomène d'anisotropie d'échange est fortement lié à la projection

### I.3. Anisotropie d'échange perpendiculaire : état de l'art



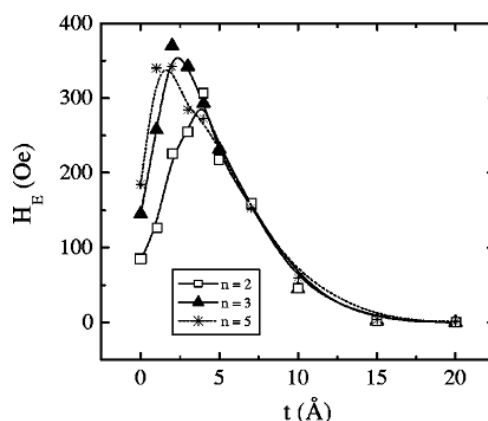
**Figure I-13 :** Cycles d'hystérésis normalisés pour les multicouches  $(Pt_{(2nm)}/Co_{(0,4nm)})_n/FeMn_{(13nm)}$ , pour (a)  $n = 2$  et (b)  $n = 5$  déduits de [Gar 03].

des spins FM-AFM à l'interface [Nog 99a]. Leurs résultats indiquent que  $H_E$  est optimisé quand les axes faciles de la couche FM et de la couche AFM sont complètement parallèles.

La figure I-14. présente les valeurs du champ d'échange en fonction de l'épaisseur du spacer de  $Pt$  pour un nombre  $n$  (2, 3 et 5) de répétitions  $(Pt/Co)$  pour les échantillons  $(Pt_{(2nm)}/Co_{(0,4nm)})_n/Pt_t/FeMn_{(13nm)}$  [Gar 03]. On remarque que l'intensité de  $H_E$  est optimale pour des épaisseurs du spacer de  $Pt$  comprises entre 0,2 et 0,4 nm. Cette épaisseur résulte d'un compromis. En effet, le couplage d'échange FM/AFM résultant principalement d'une interaction à courte distance, il s'ensuit une diminution de  $H_E$  au-delà d'une épaisseur trop élevée de la couche non magnétique. Inversement, une épaisseur du spacer de Pt suffisante est nécessaire pour réorienter, par l'ajout d'une interface supplémentaire ( $Co/Pt$ ), les spins de la dernière couche de  $Co$  perpendiculairement au plan des couches et augmenter ainsi  $H_E$ .

#### I.3.3 Alliage antiferromagnétique IrMn

L'alliage IrMn de composition atomique ( $Ir_{20}Mn_{80}$ ) est AFM à température ambiante. Il est déposé par pulvérisation cathodique sous forme de couche mince. Sa température de blocage  $T_B$  qui correspond au blocage des spins dans la structure AFM est différente de la température



**Figure I-14 :** Evolution du champ d'échange,  $H_E$ , en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice de Pt, pour un nombre  $n$  (2, 3 et 5) de répétitions (Pt/Co) pour les multicouches  $(Pt_{(20\text{\AA})}/Co_{(4\text{\AA})})_n/Pt(t)/FeMn_{(130\text{\AA})}$  [Gar 03].

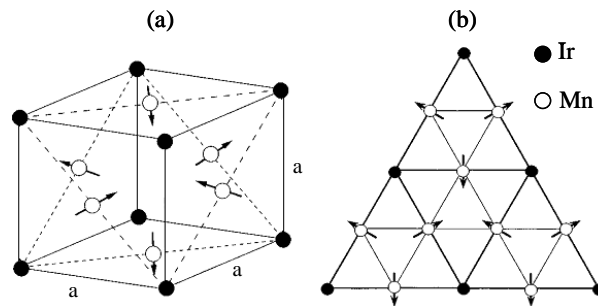
de Néel de l'alliage massif et généralement inférieure à  $T_N$ .

Quand l'épaisseur de la couche AFM diminue en deçà d'une épaisseur critique,  $T_B$  devient plus faible que  $T_N$  [Soe 97, Zaa 95].  $T_B$  est compris entre 220°C et 260°C pour des épaisseurs supérieures à 9 nm [Dev 98, Fuk 97] mais diminue pour atteindre 130°C pour une épaisseur de 7,5 nm [Dev 98]. La différence entre  $T_B$  et  $T_N$  est donc liée à l'épaisseur de la couche AFM mais aussi à la taille des grains et à la dynamique de mesure. Ainsi, pour des dynamiques très importantes,  $T_B = T_N$ , même en couches ultraminces [Pap 08].

Dans un certain nombre de cas,  $T_B$  diffère de  $T_N$  et n'est pas unique. Il existe alors une distribution de températures de blocage. Cette distribution de température est due à des différences de tailles de grains de l'AFM et (ou) à une forte rugosité de l'interface FM/AFM. Sa détermination fait l'objet d'une procédure expérimentale utilisant des recuits à différentes températures toujours inférieures à  $T_B$ , avant refroidissement sous champ [Soe 94, Bal 10].

Pour l' $Ir_{20}Mn_{80}$  massif, les mesures de diffraction de rayons X révèlent une structure cristallographique analogue à celle de  $AuCu_3$ , cfc de paramètre de maille  $a$  proche de 0,378 nm [Che 00, Fuk 97]. Cette structure est conservée pour des concentrations atomiques d' $Ir$  comprises entre 15 % et 25 %, y compris à basse température [Tom 99]. Si la structure cristallographique d' $IrMn$  est relativement simple, sa structure magnétique est beaucoup plus complexe. La structure magnétique d' $IrMn_3$  (25 %  $Ir$  et 75 %  $Mn$ ) est une structure dite triple Q (3Q), figure I-15(a), qui repose sur une maille cristallographique cfc de paramètre de maille  $a$  [Tom 99]. Dans cette structure, les moments magnétiques de  $Mn$  sont dans le plan (111), comme indiqués sur la figure I-15(b). Cette structure ne présente pas, à priori, de plan d'aimantation non nulle analogue à celui d'un AFM non compensé.

## I.4. Objectif de l'étude



**Figure I-15 :** (a) Structure AFM "triple Q" de l'alliage  $IrMn_3$ . (b) Structure de spins correspondant à la surface (111) [Tom 99].

L'intensité du champ d'échange dépend de la température. Au-delà de la température de blocage  $T_B$ , l'énergie d'échange à l'interface FM/AFM devient plus faible que l'énergie d'activation thermique, la structure de l'AFM devient paramagnétique et le champ d'échange est nul.

## I.4 Objectif de l'étude

Comme nous l'avons rappelé au paragraphe précédent, Il a été récemment observé que l'insertion d'une fine couche de  $Pt$ , d'épaisseur voisine de 0,4 nm, entre les couches FM ( $Pt/Co$ ) $_n$  et AFM ( $FeMn$  ou  $IrMn$ ) augmente très fortement le champ d'échange  $H_E$  pour certaines compositions de la bicouche FM/AFM, [Gar 03, Sor 05a]. Ce comportement est attribué au spacer de  $Pt$  dont la présence renforce l'orientation perpendiculaire des spins de la couche de  $Co$  située à l'interface FM/AFM. L'effet du spacer de  $Pt$  d'épaisseur 0,4 nm est déterminant sur les multicouches ( $Pt/Co$ ) $_n/Pt/IrMn$  dont l'épaisseur de  $Co$  est de 0,4 nm car il augmente  $H_E$  mais il est défavorable lorsque l'épaisseur de  $Co$  est égale ou supérieure à 0,6 nm,  $H_E$  s'en trouvant alors diminué [Sor 05a]. L'épaisseur de  $Co$  étant relativement faible, l'explication de ce phénomène ne peut avoir pour origine une modification de la structure de  $Co$  de cfc à hcp quand l'épaisseur augmente, cette transition structurale n'intervenant que pour des épaisseurs beaucoup plus élevées. Certains auteurs ont envisagé pour les très faibles épaisseurs de  $Co$ , des phénomènes de diffusion aux interfaces FM/AFM et  $Pt/Co$ . La diffusion aux interfaces  $Pt/Co$  est connue et a été quantifiée (paragraphe I.3.1). L'interdiffusion et la rugosité à l'interface FM/AFM sont deux facteurs prédominants dans la détermination de  $H_E$  et à notre connaissance peu caractérisés expérimentalement. Les échantillons d'épaisseur de  $Co$  0,4

---

et 0,6 nm sont très peu différents. Cette très faible différence conduit-elle à des phénomènes d'interdiffusion entre ces échantillons, susceptibles d'expliquer les valeurs fondamentalement différentes de  $H_E$  ?

Une étude approfondie de la structure de ces multicouches, corrélée à l'étude magnétique peut permettre de répondre à cette interrogation. L'étude structurale nécessite l'investigation de multicouches  $(Pt/Co_{tCo})_n/Pt_{tPt}/IrMn$  d'épaisseurs  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm et  $t_{Pt} = 0$  et  $0,4$  nm. Il s'agit donc dans cette étude de révéler, de caractériser et de comparer la structure de ces multicouches comportant des couches extrêmement fines d'épaisseurs sub-nanométriques. L'étude structurale effectuée à l'aide de la sonde tomographique doit notamment permettre de révéler ces nouvelles structures ultra fines (séquence  $(Pt/Co_{tCo})_n/Pt_{tPt}/IrMn$  de 15 nm environ). Cette étude menée en parallèle de l'étude des propriétés magnétiques devrait ainsi permettre de préciser le rôle du spacer de  $Pt$  dans ce type d'échantillons.





## CHAPITRE II

# **Techniques expérimentales**

### Introduction

Ce chapitre est consacré à la présentation des techniques de synthèse et caractérisation utilisées au cours de cette thèse. La première partie décrit la technique d'élaboration des multicouches par pulvérisation cathodique. La sonde atomique tomographique est la technique principale de caractérisation structurale utilisée durant ce travail, la description de son fonctionnement est donc particulièrement développée dans la deuxième partie de ce chapitre. La troisième partie présente la technique de préparation des échantillons permettant leur analyse en sonde atomique tomographique. Le paragraphe suivant présente la technique de caractérisation structurale des multicouches par diffraction et réflectométrie de rayons X. La dernière partie présente la technique de mesures magnétiques utilisée : le magnétomètre à SQUID.

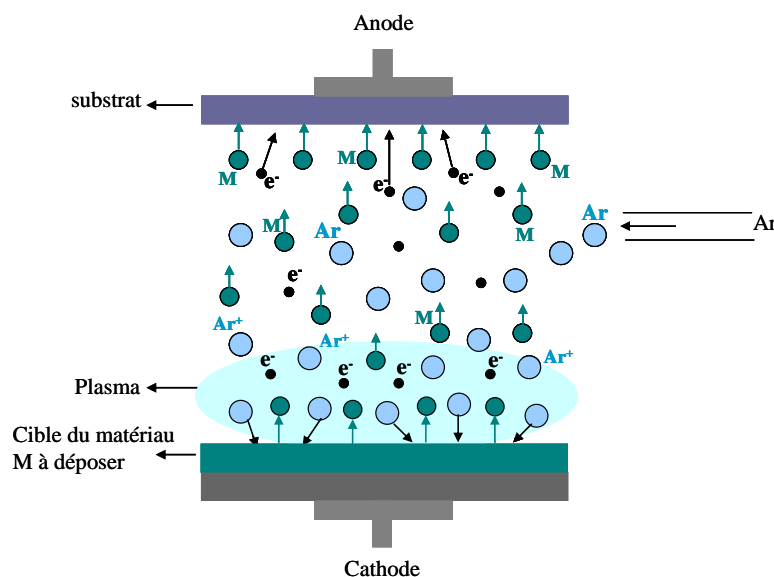
### II.1 Elaboration de couches minces par pulvérisation cathodique

Les multicouches qui ont fait l'objet de notre travail ont été élaborées par pulvérisation cathodique par *V. Baltz* et *B. Rodmacq* au laboratoire SPINTEC du CEA de Grenoble. La pulvérisation cathodique est un procédé de dépôt physique en phase vapeur (PVD : *Physical Vapor Deposition*), dont l'utilisation pour la préparation de couches minces est très répandue. Elle permet de déposer rapidement tous types de matériaux, purs ou composites, bons ou mauvais conducteurs.

#### II.1.1 Principe de la pulvérisation cathodique

Le principe de cette technique repose sur la condensation sur un substrat (ou anode), d'atomes arrachés à une source solide (ou cathode) par une décharge luminescente (ou plasma). Un bâti de pulvérisation cathodique comporte une enceinte sous vide ( $10^{-6}$  à  $10^{-4}$  Pa) [Die 99] contenant une cible constituée du matériau à déposer (cathode) et un substrat (anode) placé face à la cible, figure II-1. La cible est de quelques millimètres d'épaisseur, de dimension généralement supérieure à celle du substrat (dans notre cas la cible est de 75 mm de diamètre et le substrat de longueur maximale 15 mm). Elle est fixée sur une électrode refroidie (la cathode) que l'on porte à une tension négative de 3 à 5 kV. La deuxième électrode (l'anode) qui sert de porte-substrat est placée parallèlement à la cible à une distance de quelques centimètres. Un flux contrôlé de gaz neutre, en général l'argon, est introduit dans l'enceinte à une pression comprise entre 0,05 et 2 Pa. Ce gaz est ionisé sous l'effet du champ électrique intense créé entre les deux électrodes. Cette ionisation provoque l'apparition d'un nuage luminescent appelé plasma, localisé entre les deux électrodes. Ce plasma est composé d'atomes neutres, d'ions positifs  $Ar^+$

et d'électrons. Les ions  $Ar^+$  sont accélérés par le champ électrique en direction de la cible. Celle-ci est ainsi bombardée par des ions relativement lourds qui arrachent les atomes dont elle est constituée. La vapeur métallique qui découle de cette pulvérisation est ensuite condensée sur le substrat, formant une couche mince du même matériau que celui de la cible.



**Figure II-1** : Schéma de principe de la pulvérisation cathodique. Un champ magnétique aux abords de la cible permet de canaliser les éléments chargés du plasma à proximité de la cible.

### II.1.2 Paramètres influant sur la morphologie et la microstructure

La distance entre la cible et le substrat appelée distance de tir, ainsi que la pression d'argon au cours de dépôt, ont une influence sur la qualité des couches déposées. Lors de leur trajet entre la cible et le substrat, les atomes pulvérisés subissent des collisions avec les atomes d'argon, au cours desquelles ils vont céder une partie de leur énergie cinétique. Le nombre de collisions est proportionnel à la distance parcourue et à la pression d'argon. Le libre parcours moyen (lpm) des atomes pulvérisés, est d'autant plus petit que la pression d'argon est élevée. Si le lpm de l'atome éjecté est plus grand que la distance de tir, les atomes éjectés ne subissent pas de collision et arrivent sur le substrat avec une incidence assez uniforme et une énergie de plusieurs électronvolts. Au contraire, si le lpm est inférieur à la distance de tir, les atomes subissent une ou plusieurs collisions avant d'arriver sur le substrat. Ces atomes se déposent avec des incidences plus aléatoires dans un état thermalisé, c'est-à-dire avec une énergie de l'ordre de 0,1 eV. Si l'énergie des atomes arrivant sur le substrat est trop élevée, les atomes des

## II.1. Elaboration de couches minces par pulvérisation cathodique

couches inférieures déjà déposées peuvent être déplacés entraînant une dégradation de l'échantillon. Si l'énergie des atomes se déposant sur le substrat est trop faible, leur mobilité à la surface du substrat sera insuffisante et mènera à la formation de couches poreuses et fortement rugueuses [Bes 85, Bil 05]. Lors de dépôts de multicouches à faible pression d'Ar, la rugosité des couches est faible, mais on observe un mélange important des éléments aux interfaces. A pression plus élevée, le mélange des éléments aux interfaces diminue, les interfaces sont alors plus abruptes, mais la rugosité des couches augmente. Le choix des paramètres correspondant aux meilleures conditions de croissance repose donc sur un compromis rugosité-mélanges aux interfaces [Koo 95, Die 99].

De plus, la qualité de la croissance dépend du type de substrat utilisé par rapport au matériau déposé. Généralement, en pulvérisation cathodique, les substrats utilisés sont des substrats non orientés ou orientés, en particulier des substrats de  $Si(100)$  recouverts de leur oxyde natif amorphe  $SiO_2$ . En général, la direction de croissance des échantillons préparés par pulvérisation cathodique correspond à un empilement des plans denses, c'est-à-dire, une direction de croissance [111] pour les matériaux cubiques à faces centrées, [110] pour les cubiques centrés, [0001] pour les hexagonaux [Die 99].

### II.1.3 Préparation des échantillons

Les multicouches de type  $(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$  ont été déposées à température ambiante, sur substrat de Si cristallin surmonté d'une couche de 500 nm d'oxyde thermique amorphe, sous un vide de  $5,3 \times 10^{-6}$  Pa et une pression d'argon de 0,25 Pa. Dans chaque cas une couche tampon de Ta de 3 nm d'épaisseur a été préalablement déposée. Afin d'induire l'anisotropie perpendiculaire, les multicouches ont été recuites à 150°C sous champ négatif perpendiculaire à la surface des couches.

Deux séries d'échantillons ont été préparées, la série 1 comporte des couches de Co d'épaisseur  $t_{Co} = 0,4$  nm et la série 2 comporte des couches de Co d'épaisseur  $t_{Co} = 0,6$  nm. Pour chaque série, des échantillons sans spacer de Pt ( $t_{Pt} = 0$  nm) et avec spacer de Pt ( $t_{Pt} = 0,4$  nm) ont été élaborés. De plus, afin de réaliser les analyses en sonde atomique, la séquence de base  $(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$  a été répétée sept fois et déposée sur un réseau de plots de Si obtenu par lithographie (cf. paragraphe II.3).

Deux types de substrat ont donc été utilisés :

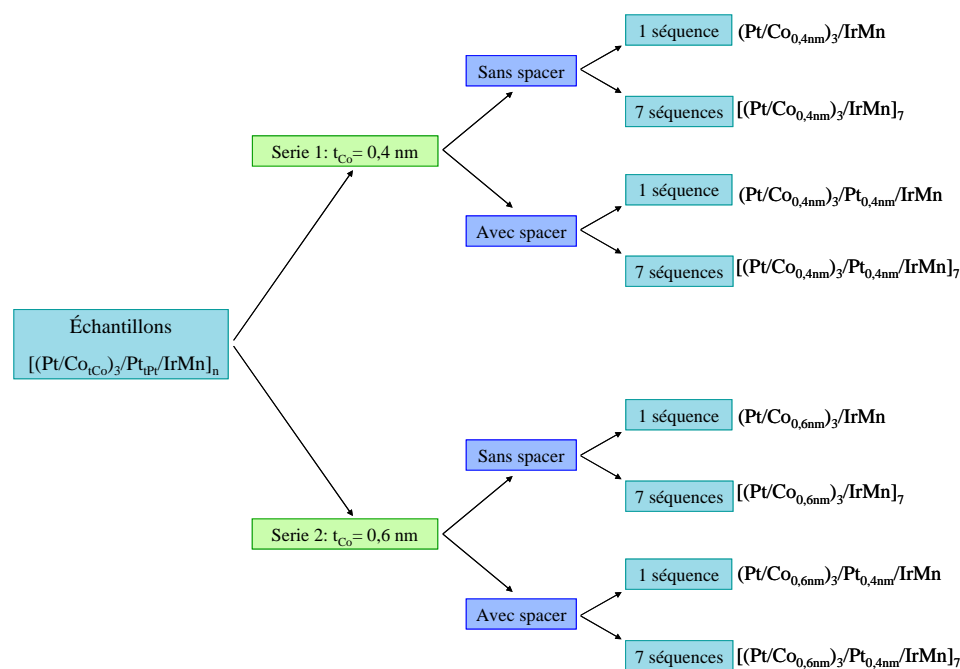
- un substrat plan de Si pour les caractérisations par les techniques conventionnelles,
- un substrat de plots de Si pour les analyses en sonde atomique.

Les plots sont constitués de Si cristallin recouvert également d'un oxyde natif. Les deux types de substrats (plans et plots) sont donc de même nature, conduisant à une croissance simi-

laire des couches et à une structure cristalline des couches très proche.

Toutes les multicouches déposées ont ensuite été recouvertes d'une couche de protection de Pt de 10 nm d'épaisseur.

Les figures II-2 et II-3 présentent schématiquement les différents types d'échantillons élaborés. Au total, huit échantillons ont été préparés.



**Figure II-2 :** Présentation synthétique des échantillons analysés.

## II.2 Sonde atomique tomographique

La sonde atomique tomographique est un microscope analytique tridimensionnel de haute résolution. Son principe de fonctionnement repose sur l'évaporation par effet de champ des atomes de surface d'un échantillon préparé sous la forme d'une pointe. Cette technique trouve son origine dans l'invention du microscope ionique (1951) et de la sonde atomique (1968) par E. Müller. La sonde atomique permettait à l'époque de mesurer la composition chimique d'un échantillon, [Mul 68]. L'échantillon à analyser est tout d'abord préparé sous la forme d'une pointe dont le rayon de courbure doit être inférieur à 50 nm. Il est ensuite placé dans une enceinte sous ultra-vide et polarisé positivement avec un potentiel électrique de quelques kV. Il en résulte l'apparition d'un champ électrique à l'apex de la pointe dont l'intensité est inversement proportionnelle au rayon de courbure  $R$  de la pointe (effet de pointe). La faible valeur de  $R$

## II.2. Sonde atomique tomographique

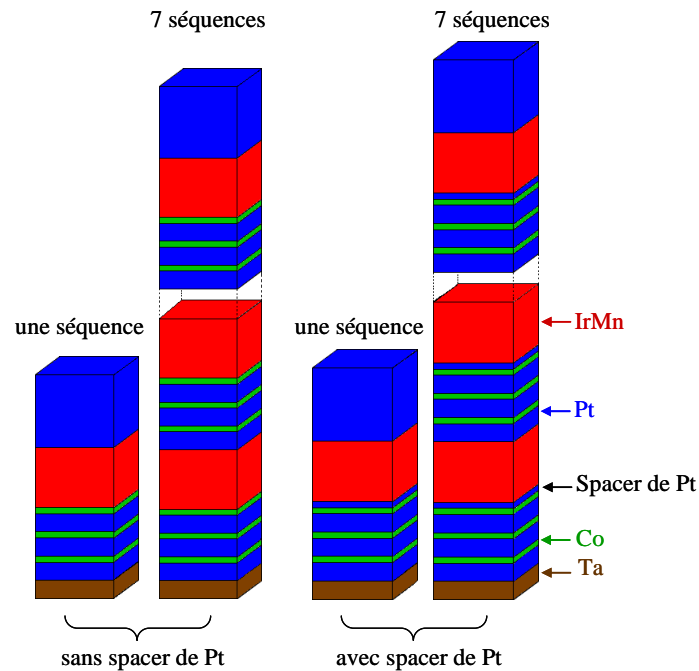


Figure II-3 : Présentation schématique des couches déposées.

( $\approx 50$  nm) permet d'atteindre des valeurs de champs électriques élevées de quelques dizaines de V/nm qui provoquent l'ionisation et l'évaporation des atomes de la surface de l'échantillon. Un spectromètre de masse à temps de vol permet alors de déterminer la nature chimique des atomes évaporés. En évaporant la pointe couche atomique par couche atomique et atome par atome, on obtient la composition chimique de l'échantillon en fonction de la profondeur analysée.

La sonde atomique tomographique a été mise au point au début des années 1990. Le détecteur d'ions constituant le spectromètre de masse à temps de vol de la sonde atomique a été remplacé par un détecteur d'ions sensible en position. Ce type de détecteur permet non seulement la mesure des temps de vol, mais également l'enregistrement de la position ( $X, Y$ ) des impacts de chaque ion. Ces informations permettent alors de calculer la position initiale des atomes à la surface de l'échantillon et de reconstruire en 3D le volume de l'échantillon analysé. On peut donc observer en 3D, dans l'espace réel, la structure d'un matériau à l'échelle atomique [Bla 93a, Cer 88].

## II.2.1 Principe de fonctionnement de la sonde atomique tomographique

### II.2.1.1 Mesure du temps de vol et spectrométrie de masse

La mesure du temps de vol d'un atome évaporé nécessite de connaître l'instant de départ et l'instant d'arrivée. Il est donc indispensable de contrôler l'évaporation des atomes. Pour cela, un potentiel électrique continu  $V_0$  légèrement inférieur au seuil d'évaporation des atomes est appliqué à la pointe auquel est superposé un potentiel impulsionnel  $V_P$  de courte durée à une fréquence de plusieurs dizaines de kHz. Le champ créé à la surface de l'échantillon devient alors suffisant pour évaporer les atomes de la surface de la pointe sous forme d'ions  $n$  fois chargés. Les impulsions  $V_P$  déclenchent un chronomètre qui s'arrête lorsque les atomes évaporés sont recueillis par le détecteur d'ions situé à une distance  $L$  face à l'échantillon, figure II-4. La détermination du temps de vol des atomes et la connaissance du potentiel appliqué à la pointe, permet de calculer le rapport masse sur état de charge des atomes détectés à partir de la conservation de l'énergie. En utilisant l'hypothèse que la durée d'accélération de l'atome évaporé est négligeable par rapport à la durée du temps de vol, on en déduit :

$$ne(V_0 + V_P) = \frac{Mv^2}{2} \quad (\text{II-1})$$

Où  $M$  est la masse de l'ion,  $v$  sa vitesse,  $n$  le nombre de charge,  $e$  la charge de l'électron.  $V_0$  et  $V_P$  sont respectivement les potentiels continu et impulsionnel. Le rapport masse sur charge, en unité de masse atomique (u.m.a), s'exprime par :

$$\frac{M}{n} = 2e(V_0 + V_P) \left[ \frac{t_v}{L} \right]^2 \quad (\text{II-2})$$

avec  $t_v$  le temps de vol, et  $L$  la distance entre l'échantillon et le détecteur. Après évaporation de la pointe, on obtient un spectre de masse qui permet d'identifier les éléments chimiques qui constituent l'échantillon, figure II-5.



## II.2. Sonde atomique tomographique

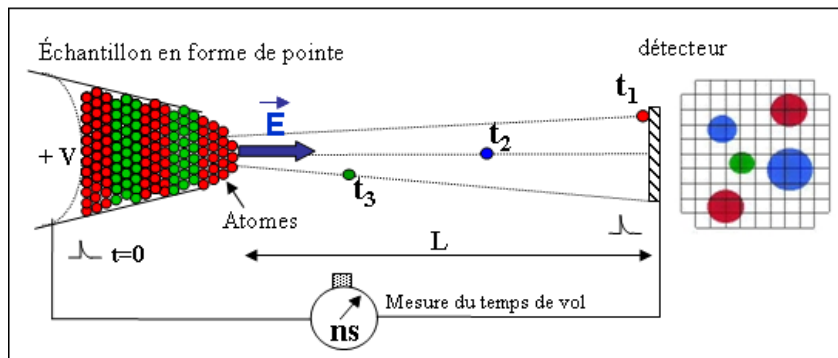


Figure II-4 : Schéma de principe de la sonde atomique électrique.

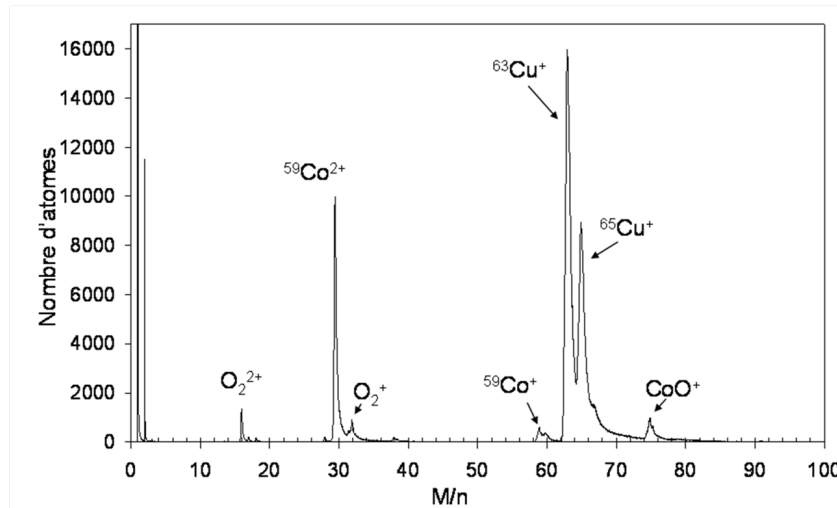
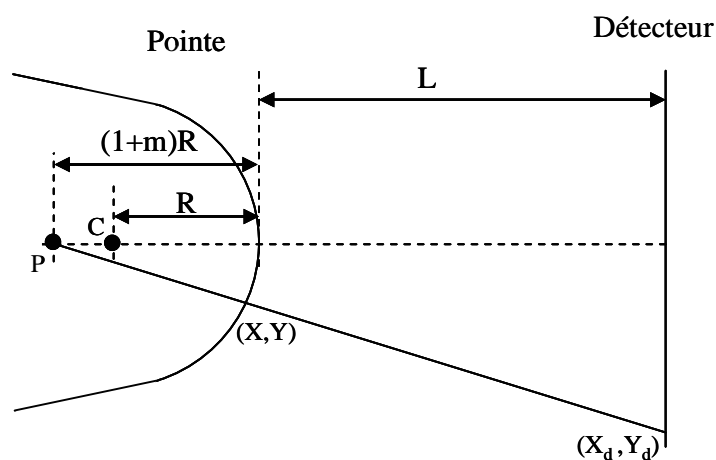


Figure II-5 : Exemple de spectre de masse obtenu par sonde atomique sur un alliage forcé  $Cu_{80}Co_{20}$  [Lar 11].

### II.2.1.2 Reconstruction 3D du volume analysé

Les méthodes de reconstruction des volumes analysés par la sonde atomique tomographique ont été détaillées dans le passé [Bas 97, Geu 05]. La sonde atomique tomographique étant un microscope à projection, figure II-6, les atomes évaporés peuvent être considérés comme provenant du point de projection  $P$  situé à une profondeur  $(1 + m)R$  de la surface de la pointe, où  $m$  est un facteur géométrique sans dimension.

Les coordonnées des impacts des ions sur le détecteur ( $X_D$  et  $Y_D$ ) permettent alors de calculer par projection inverse la position d'origine des atomes à la surface de la pointe ( $X, Y$ ). La profondeur  $Z$  de chaque atome est déterminée à partir de leur ordre d'arrivée. On peut ainsi reconstruire le volume analysé en trois dimensions avec un grandissement  $G$  de l'ordre de  $10^7$



**Figure II-6 :** Géométrie pointe-détecteur déterminant les paramètres de projection du microscope à sonde atomique.

[Bas 95].  $G$  est donné par la relation (IV-1), il dépend du rayon de courbure de l'échantillon  $R$  et de la distance  $L$  entre l'échantillon et le détecteur.

$$G \approx \frac{L}{(1+m)R} \quad (\text{II-3})$$

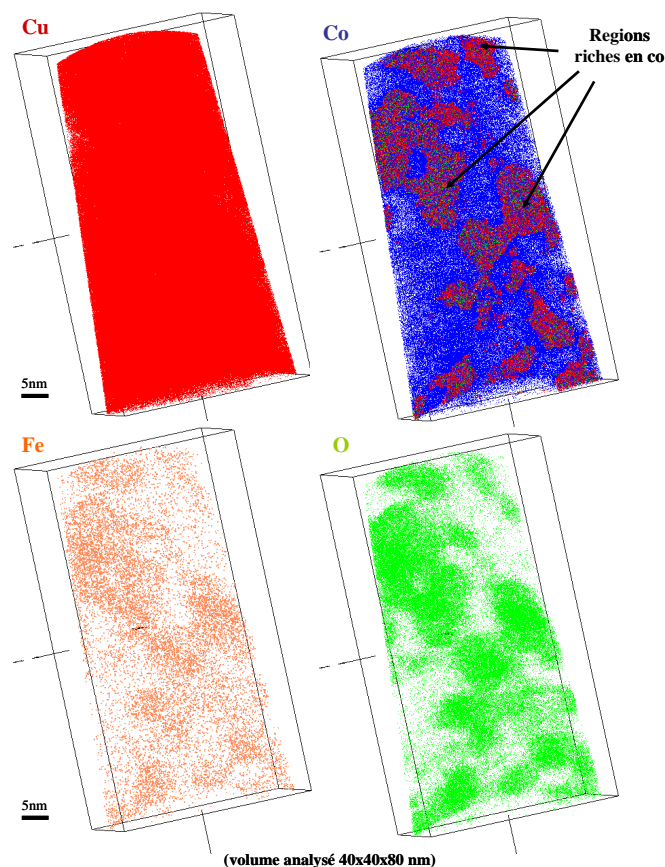
Généralement, la pointe a la forme d'un tronc de cône, dont le rayon de courbure augmente au fur et à mesure de l'évaporation. Comme le rayon de courbure est relié au potentiel total  $V$  appliqué à l'échantillon par la relation :

$$R = \frac{V}{E\beta} \quad (\text{II-4})$$

où  $E$  est le champ d'évaporation et  $\beta$  un facteur géométrique sans dimension, il faut donc augmenter le potentiel appliqué à l'échantillon pour maintenir le champ d'évaporation et le flux d'évaporation constants. Par conséquent, le grandissement de la projection  $G$  diminue au cours de l'analyse et peut être calculé pour chaque atome évaporé. De plus, les relations (IV-1) et (IV-2) montrent que le grandissement  $G$  dépend du champ d'évaporation des éléments constituant l'échantillon. Des phénomènes de grandissement local appelés " effets de loupe " sont alors observés lorsque l'échantillon analysé est constitué de phases présentant des champs d'évaporation différents. L'effet de loupe peut ainsi introduire des artefacts dans la reconstruction en 3D. Il convient donc de les prendre en compte afin d'interpréter au mieux les résultats obtenus.

## II.2. Sonde atomique tomographique

Après traitement des données on obtient donc une cartographie de la distribution spatiale des atomes constituant l'échantillon analysé. La figure II-7 présente un exemple de reconstruction 3D obtenu sur un alliage forcé  $Cu_{80}Co_{20}$ , [Lar 11].



**Figure II-7 :** Exemple de reconstruction 3D obtenue après analyse en sonde atomique tomographique d'un alliage forcé  $Cu_{80}Co_{20}$  par broyage mécanique. Les échantillons ont été broyés dans une jarre en acier sous atmosphère ambiante expliquant la présence de fer et d'oxygène dans l'alliage [Lar 11].

### II.2.2 Sonde atomique assistée par laser femtoseconde

L'analyse en sonde atomique tomographique de matériaux mauvais conducteurs comme les isolants et les semi-conducteurs étant impossible avec des impulsions électriques, le Groupe de Physique des Matériaux a développé en 2006 une sonde atomique utilisant des impulsions laser femtosecondes pour déclencher l'évaporation des atomes [Gau 06]. Cette technique permet aussi l'analyse de matériaux très fragiles (couches minces). En effet, en diminuant le potentiel

continu appliqué à la pointe, on réduit les contraintes mécaniques générées dans l'échantillon et les risques de rupture. Le système laser utilisé dans notre laboratoire est un s-Pulse laser Ytterbium, de la société Amplitude System, générant des impulsions de 350 fs avec une longueur d'onde de 1030 nm (IR). Un système optique constitué de cristaux doubleurs et tripleurs de fréquence permet de travailler avec des longueurs d'onde de 515 nm (vert) et 343 nm (UV).

Les multicouches que nous avons étudiées  $Ta/[(Pt/Co)_3/Pt_{Pt}/IrMn]_7/Pt$  sont constituées d'éléments présentant une forte différence de champ d'évaporation. Toutes les analyses effectuées en sonde atomique électrique, se sont donc avérées infructueuses et ont conduit à la rupture systématique des pointes en début d'analyse. L'ensemble des résultats a donc été obtenu en utilisant la sonde atomique tomographique assistée par laser femtoseconde. La longueur d'onde du laser a été choisie en fonction de la résolution obtenue sur le spectre de masse. La figure II-8 montre les spectres de masse obtenus pour Pt et Ir en utilisant  $\lambda = 1030$  nm (IR) et  $\lambda = 515$  nm (vert) respectivement. On constate que pour  $\lambda = 1030$  nm, figure II-8(a), la résolution n'est pas suffisante pour résoudre correctement les différents pics de Pt et Ir tandis que pour  $\lambda = 515$  nm (vert) on distingue parfaitement les cinq pics du Pt et les deux pics de l'Ir, figure II-8(b). L'ensemble des analyses a donc été effectué avec  $\lambda = 515$  nm (vert).

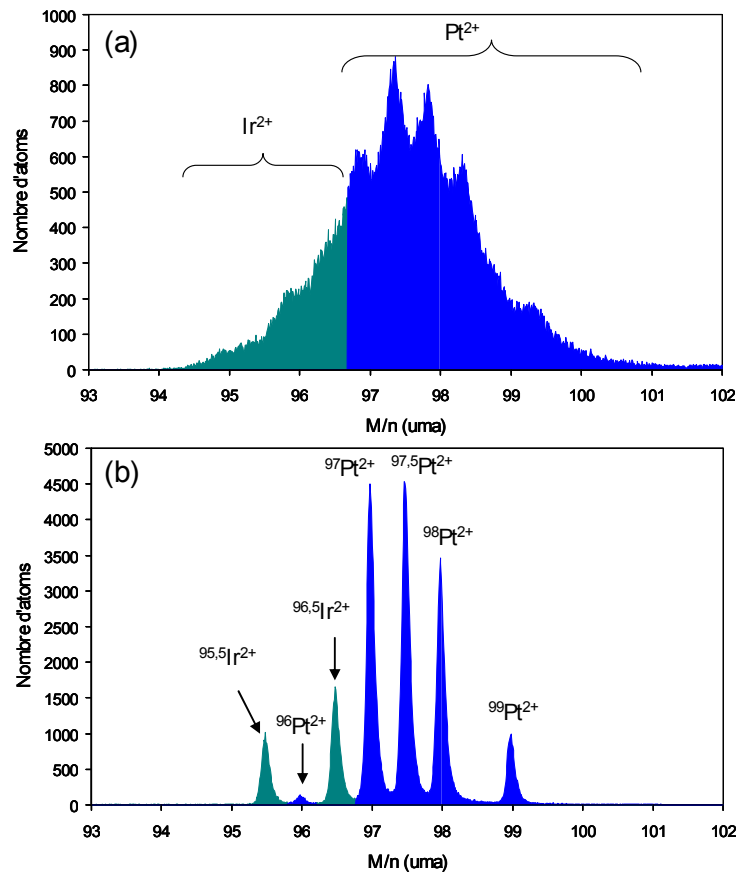
## II.3 Faisceau d'ions focalisé et préparation des pointes

Les techniques électrochimiques usuelles employées pour préparer les pointes de sonde atomique à partir de matériaux massifs ne sont pas utilisables pour la préparation de pointes de matériaux déposés sous forme de couches minces ou de multicouches. Il a donc été impossible pendant plusieurs décennies d'analyser ce genre de matériaux en sonde atomique tomographique. Depuis une dizaine d'années, le développement des techniques d'usinage par faisceau d'ions focalisés (FIB : *Focused Ion Beam*) a permis de mettre au point des nouveaux protocoles de préparation de pointes pour analyser les nanomatériaux. L'une des techniques pour l'analyse de couches minces consiste à déposer le matériau sur des plots de Si et à former la pointe par usinage par FIB [Lar 04].

### II.3.1 Principe du FIB

Le principe de fonctionnement du FIB ressemble à celui du microscope électronique à balayage (MEB). La différence est que le MEB utilise un faisceau d'électrons focalisés pour former l'image d'un échantillon quand le FIB utilise un faisceau d'ions focalisés de gallium (Ga). L'utilisation du faisceau de Ga à faible courant permet la visualisation de l'échantillon

### II.3. Faisceau d'ions focalisé et préparation des pointes



**Figure II-8 :** Spectre de masse présentant les pics de Pt et Ir obtenus avec (a) :  $\lambda = 1030$  nm (IR) et (b) :  $\lambda = 515$  nm (vert).

comme pour le MEB. La masse des ions *Ga* est plus élevée que celle des électrons, lorsque le courant utilisé est intense, ce faisceau d'ions peut graver l'échantillon. Les courants utilisés varient entre 5 nA pour l'usinage à 1 pA pour l'imagerie avec une tension d'accélération de 30 kV.

L'instrument utilisé pour notre étude est un microscope électronique à balayage Zeiss 1530 équipé d'une colonne ionique Orsay Physics qui permet de travailler avec une tension d'accélération de 30 kV ou de 2 kV.

#### II.3.2 Préparation des pointes par FIB

Les multicouches ont été déposées sur un réseau de plots de Si, figure II-9, ces plots ont une hauteur d'environ 100  $\mu\text{m}$  et un diamètre de quelques  $\mu\text{m}$ . Ils sont obtenus par gravure profonde selon le procédé Bosch [Ayo 99] à partir de wafers de *Si* plans. Après dépôt des couches, on récupère puis on disperse des centaines de plots sur une lame de verre. Les plots sont ensuite

collés au sommet d'une pointe support, figure II-10. Afin de protéger la couche d'intérêt des dommages causés par l'irradiation aux ions  $Ga^+$  une couche de protection de  $Cr$  est ensuite déposée sur chaque plot.

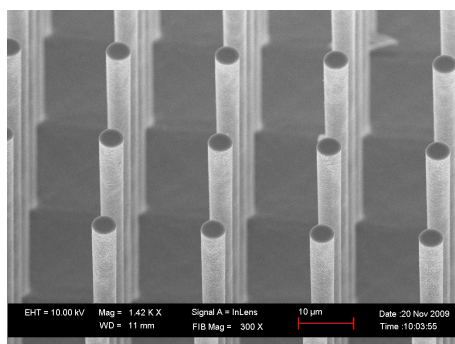


Figure II-9 : Substrat constitué d'un réseau de plots de Si.

Le plot ainsi monté au sommet de la pointe support est ensuite introduit dans le MEB/FIB et orienté parallèlement au faisceau d'ions  $Ga$ . La pointe est alors formée par usinage annulaire par étapes successives, figure II-11. Lors de la dernière étape dite de "cleaning" la tension d'accélération des ions est diminuée à 2 kV afin d'enlever la zone endommagée par le  $Ga$  tout en limitant l'implantation dans la couche d'intérêt.

La figure II-12 présente des images MEB de la formation d'une pointe. Les sept séquences  $(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3/IrMn_{7nm}$  y sont clairement observables.

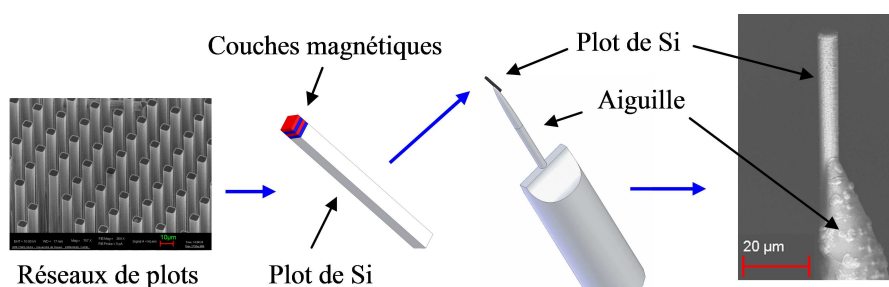


Figure II-10 : Préparation d'une pointe, collage de plot.

## II.3. Faisceau d'ions focalisé et préparation des pointes

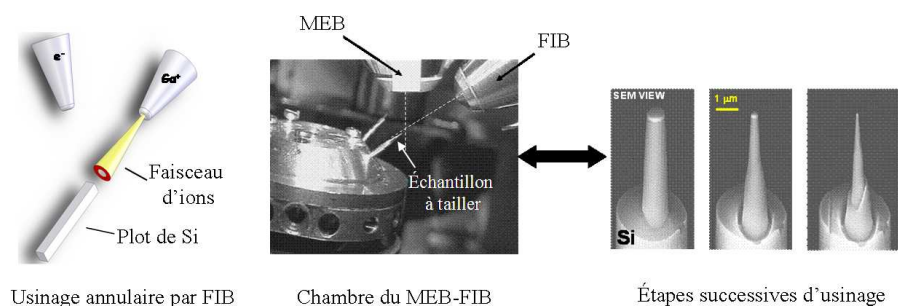


Figure II-11 : Usinage d'une pointe par FIB.

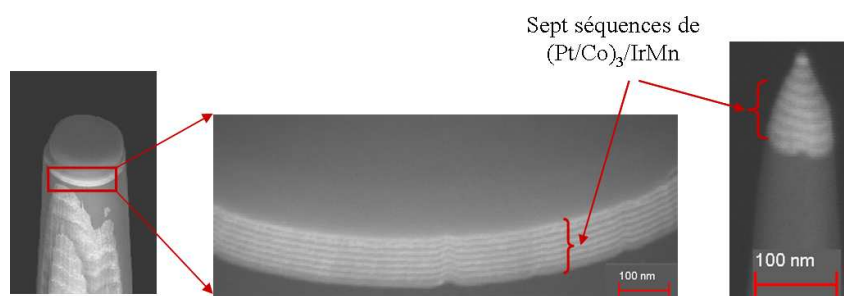


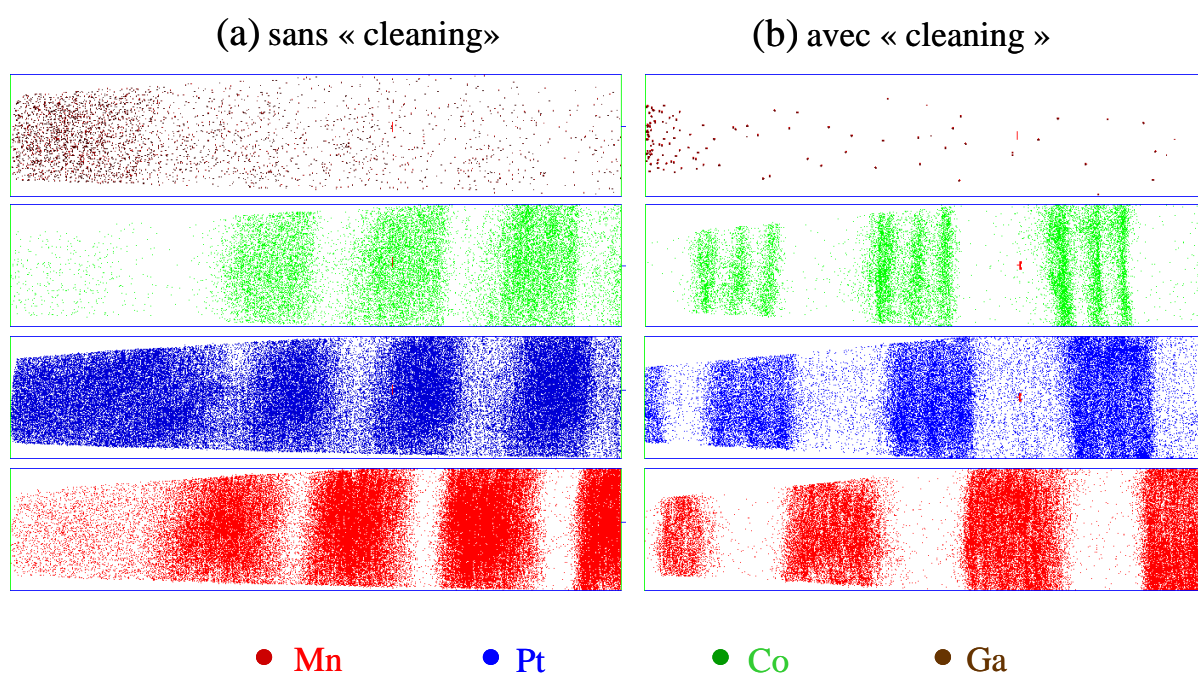
Figure II-12 : Images MEB présentant les séquences observées après usinage.

### II.3.3 Effet de l'irradiation aux ions $Ga^+$ sur la structure des multicouches

Des analyses en sonde atomique tomographique de pointes uniquement usinées avec un faisceau d'ions de 30 kV (pas d'étape de *cleaning* à 2 kV) ont été réalisées afin d'observer l'effet de l'implantation de  $Ga$  sur la microstructure des couches. La figure II-13 montre des reconstructions 3D obtenues sur des pointes préparées sans *cleaning* (a) et avec *cleaning* (b).

On constate sur la figure II-13(a) que  $Ga$  a fortement pénétré la zone d'intérêt sur plus d'une dizaine de nanomètres et a fortement endommagé la structure multicouche. En procédant à l'étape de *cleaning* à basse énergie lors de la préparation de la pointe, on peut constater que la profondeur de pénétration de  $Ga$  est nettement plus faible (2-3 nm) et que l'ensemble des séquences  $(Pt/Co)_3$  est clairement observable.

Ces résultats montrent que notre procédé d'usinage de pointe permet de s'affranchir des problèmes liés à l'implantation des ions  $Ga^+$ .



**Figure II-13** : Reconstitutions 3D obtenues après analyse en sonde atomique de pointes préparées par FIB : (a) sans cleaning, et (b) avec cleaning.

## II.4 Diffraction et réflectométrie de rayons X

### II.4.1 Diffraction de rayons X

La diffraction de rayons X est une technique d'analyse structurale permettant de caractériser la nature cristalline des matériaux déposés. L'intérêt de cette technique pour l'étude de l'état solide vient du fait que ces radiations électromagnétiques ont des longueurs d'onde de l'ordre de l'angström, c'est-à-dire de l'ordre de grandeur des distances interatomiques dans la matière à l'état condensé [Den 62].

Lorsque les rayons X éclairent un morceau de matière, ils sont diffusés par chacun des atomes de la cible. Si les atomes sont ordonnés et placés selon les plans réticulaires désignés par les indices de Miller ( $hkl$ ) avec une distance  $d$  entre deux plans, le matériau présente les caractéristiques de l'état cristallin. Les rayons X diffusés interfèrent entre eux. Ces interférences sont constructives dans certaines directions, et destructives dans d'autres directions. Ces interférences d'ondes diffusées constituent le phénomène de diffraction.



## II.4. Diffraction et réflectométrie de rayons X

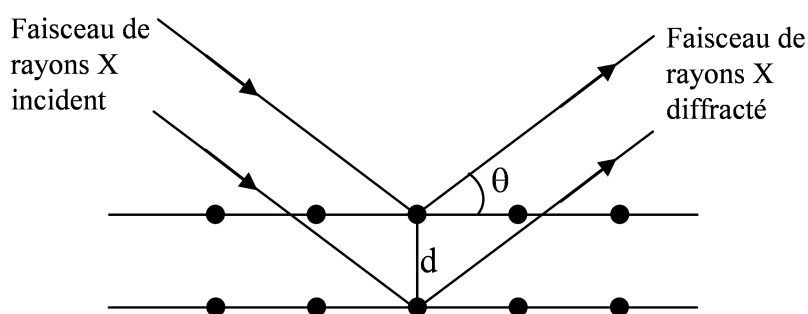
En éclairant un cristal avec un faisceau de rayons X, on obtient une figure de diffraction constituée de pics caractéristiques des plans réticulaires diffractants. La position de chaque pic caractérisée par l'angle de diffraction  $\theta$ , figure II-14, dépend de l'orientation et de la distance réticulaire de la famille de plans diffractants. Cet angle  $\theta$  vérifie la loi de Bragg suivant la relation :

$$2 \times d_{hkl} \times \sin(\theta) = \lambda \quad (\text{II-5})$$

où  $d_{hkl}$  est la distance réticulaire des plans d'indices  $(hkl)$ , et  $\lambda$  la longueur d'onde des rayons X utilisés. Les paramètres de maille sont reliés aux indices  $(hkl)$  et à la distance réticulaire  $d$  par une relation qui dépend de la structure cristalline. Par exemple, pour une structure cubique de paramètre de maille  $a$  :

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (\text{II-6})$$

A partir de la position de chaque pic et des indices  $(hkl)$  des plans diffractants, les paramètres de maille  $a$  d'une structure cristalline peuvent être calculés.

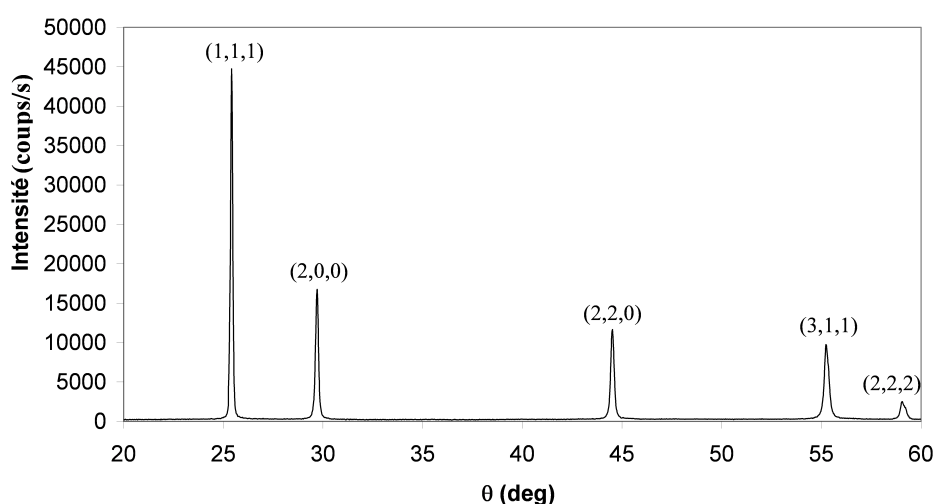


**Figure II-14 :** Faisceau de rayons X diffracté sur une famille de plans atomiques caractérisés par la distance réticulaire  $d$ .

Les analyses par diffraction de rayons X ont été effectuées au laboratoire à l'aide d'un diffractomètre Brucker D8, le rayonnement utilisé est la radiation ( $K_{\alpha 1}$ ) du Co ( $\lambda = 0,178897$  nm). Deux montages sont possibles : le montage  $\theta$ - $\theta$ , pour lequel l'échantillon est fixe, le tube de rayons X et le détecteur se déplaçant de façon symétrique, et le montage  $\theta$ - $2\theta$ , pour lequel le tube est fixe, l'échantillon et le détecteur étant mobiles. Les analyses peuvent être effectuées aux petits et aux grands angles.

A titre d'exemple, la figure II-15 représente le diffractogramme obtenu sur une poudre de cuivre. Ce diffractogramme est caractéristique d'une structure cristalline cubique faces centrées (cfc). Dans le cas d'une poudre, toutes les orientations cristallographiques sont statistiquement

distribuées, c'est pourquoi toutes les familles de plans réticulaires sont diffractantes. Contrairement aux poudres dont les diffractogrammes présentent tous les pics de diffraction associés à chaque famille de plans réticulaires, les diffractogrammes d'échantillons massifs peuvent présenter des extinctions de pics liées à des effets de texture.



**Figure II-15 :** *Diffractogramme X d'une poudre de cuivre, chaque pic de diffraction est associé à une famille de plans réticulaires d'indices (hkl).*

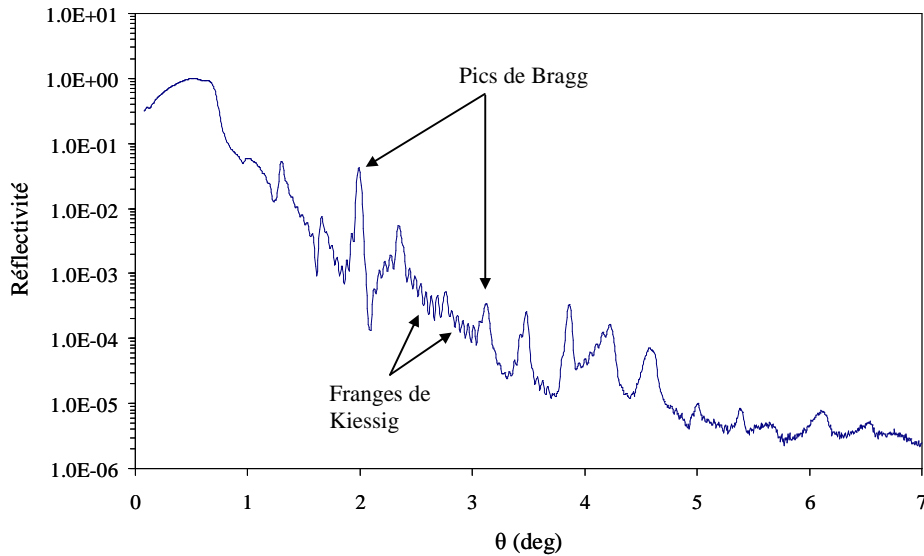
#### II.4.2 Réflectométrie de rayons X

La réflectométrie de rayons X aux petits angles est une technique permettant de déterminer l'épaisseur des couches déposées. Elle nous renseigne également sur la périodicité d'une multicouche ainsi que sur la rugosité et le degré d'interdiffusion aux interfaces. Contrairement à la diffraction de rayons X, le faisceau incident n'est pas sensible à la position des plans atomiques mais aux interfaces entre deux couches. Les interférences entre les faisceaux incidents et réfléchis sur les différentes interfaces de l'échantillon produisent le signal mesuré. L'ajustement de la courbe expérimentale permet de déduire l'épaisseur et la rugosité des couches étudiées.

Sur les spectres de rayons X aux petits angles de couches minces, on observe généralement des franges appelées " pics de Bragg " produites par les interférences entre les rayons X réfléchis par les interfaces et ceux réfléchis par la surface libre de l'échantillon. La distance entre deux pics de Bragg adjacents dépend de la période  $\eta$  de la multicouche. Les interférences entre les rayons réfléchis par le substrat et la surface libre génèrent aussi des franges appelées " franges de Kiessig ". Elles permettent de déduire l'épaisseur totale de l'empilement ( $n\eta$ ,  $n$  étant le nombre de périodes) et apparaissent au nombre de  $(n - 2)$  entre deux pics de Bragg.

## II.5. Magnétomètre à SQUID

La figure II-16 présente un diagramme de réflectométrie de rayons X pour les multicouches  $[(Pt/Co)_3/IrMn]_7$  montrant les pics de Bragg et les Franges de Kiessig.



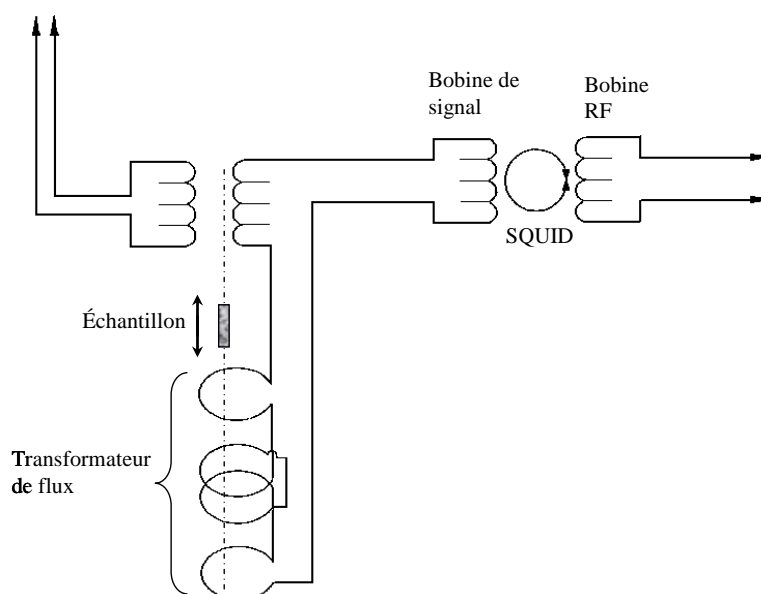
**Figure II-16 :** Diagramme de réflectométrie de rayons X pour la multicouche  $Si/SiO_2/Ta_{3nm}/[(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3/IrMn_{7nm}]_7/Pt_{10nm}$ .

Dans notre étude, Les échantillons ont été caractérisés par réflectométrie de rayons X aux petits angles à l'aide du diffractomètre Bruker D8. Le générateur de rayons X est muni d'une anticathode de  $Co$ , et le rayonnement utilisé est la radiation ( $k_{\alpha 1}$ ) du  $Co$  ( $\lambda = 0,178897$  nm). Pour déduire les valeurs de l'épaisseur de chaque couche et la rugosité de l'interface, les courbes de réflectométrie ont été ajustées à l'aide du programme SimulReflec [Ott 06].

## II.5 Magnétomètre à SQUID

Les mesures magnétiques ont été effectuées au laboratoire à l'aide d'un magnétomètre à SQUID (*Superconducting QUantum Interference Device*) radiofréquence, modèle MPMS XL de Quantum Design. Ce magnétomètre comporte une bobine supraconductrice permettant d'atteindre un champ magnétique de 5 Teslas, dans un intervalle de température allant de 5 à 400 K. Le principe de mesure au SQUID est fondé sur le déplacement de l'échantillon dans des bobines de mesure à une température donnée et dans un champ magnétique appliqué. La détection du flux magnétique se fait grâce à un anneau supraconducteur comportant une ou deux jonctions

Josephson appelées SQUID, figure II-17. La tension induite par la variation de flux magnétique provoquée par le déplacement de l'échantillon permet de mesurer le moment magnétique de l'échantillon, et ainsi d'en déduire son aimantation [Blo 96]. La sensibilité de ce magnétomètre permet de mesurer des variations de moment magnétique de l'ordre de  $10^{-8}$  uem.



**Figure II-17 :** Principe de fonctionnement du SQUID.



## CHAPITRE III

# **Propriétés magnétiques et nanostructurales des multicouches**

$[(Pt_{2nm}/Co_tCo)_3/Pt_tPt/IrMn_{7nm}]_n$

## Introduction

Nous nous intéressons dans la première partie de ce chapitre aux propriétés magnétiques des multicouches  $[(Pt_{2nm}/C_{0tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}]_n/Pt_{10nm}$ , avec  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm,  $t_{Pt} = 0$  et  $0,4$  nm et  $n = 1$  et  $7$  séquences, déposées par pulvérisation cathodique sur des substrats continus de silicium. Rappelons que  $t_{Pt} = 0$  nm fait référence à l'échantillon sans spacer de  $Pt$  et  $t_{Pt} = 0,4$  nm fait référence à l'échantillon avec spacer de  $Pt$ . Afin d'étudier l'influence sur l'anisotropie d'échange, du spacer de  $Pt$  entre la multicouche  $(Pt/Co)_3$  et la couche  $IrMn$ , les cycles d'hystérésis ont été mesurés à  $5$  et  $300$ K à l'aide d'un magnétomètre à SQUID en appliquant le champ magnétique perpendiculairement au plan des couches. Le refroidissement à  $5$ K a été effectué sous champ négatif de  $1$ T. Les multicouches ont été recuites à  $150^\circ\text{C}$  pendant trente minutes puis ramenées à température ambiante sous un champ négatif de  $0,24$  T. Le décalage des cycles d'hystérésis vers les champs positifs traduit une anisotropie d'échange négative.

La deuxième partie de ce chapitre est consacrée aux résultats de l'analyse structurale effectuée par réflectométrie et diffraction de rayons X.

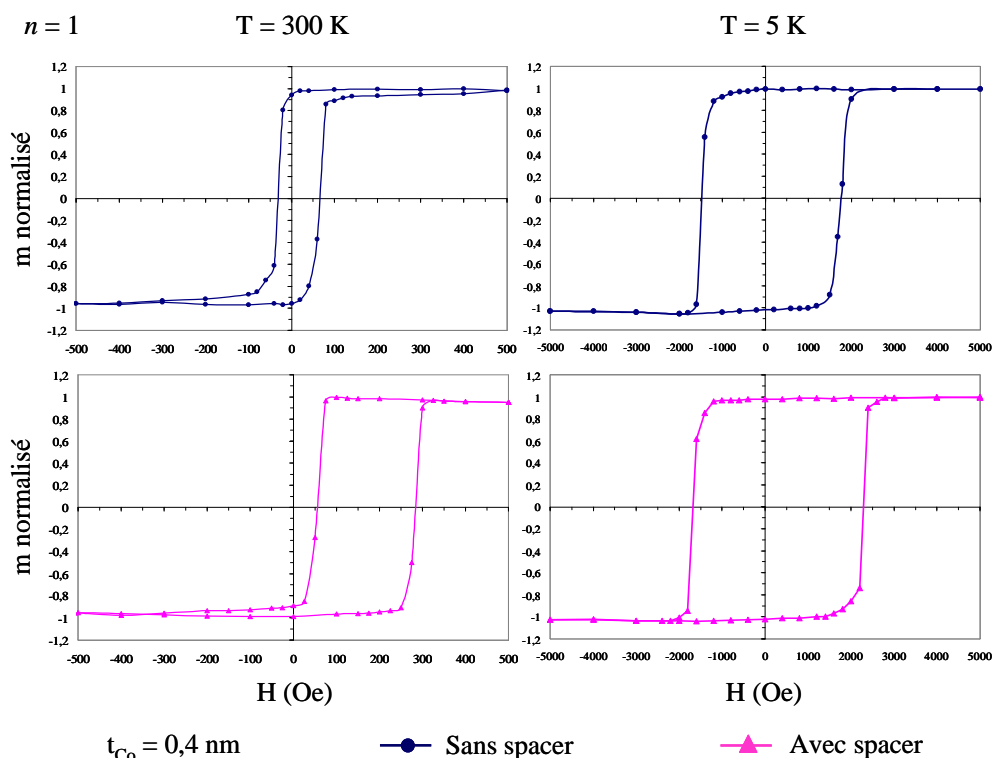
Dans ce chapitre, on présente les propriétés magnétiques obtenues pour les différentes multicouches. L'interprétation de ces résultats sera effectuée en corrélation avec les résultats des mesures de rayon X et de sonde atomique tomographique.

## III.1 Propriétés magnétiques des multicouches $[(Pt/C_{0tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_n$

### III.1.1 Multicouches avec : $t_{Co} = 0,4$ nm et $n = 1$

La figure III-1 présente les cycles d'hystérésis mesurés à  $300$  et  $5$ K pour les échantillons  $(Pt/C_{00,4nm})_3/IrMn$ , et  $(Pt/C_{00,4nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn$ . Les deux échantillons montrent des cycles d'hystérésis carrés, attribués à une forte anisotropie hors du plan [Sor 05a, Sor 05b]. L'insertion d'un spacer de  $Pt$  entre la multicouche  $(Pt/Co)_3$  et la couche  $IrMn$  conduit à  $300$ K à une augmentation du champ d'échange de  $H_E = 17$  Oe à  $H_E = 115$  Oe.

Les mesures à  $5$ K montrent que, pour les deux échantillons, le champ d'échange est plus élevé à basse température qu'à température ambiante. En effet, à  $5$ K l'insertion du spacer de  $Pt$  augmente la valeur du champ d'échange de  $H_E = 138$  Oe à  $H_E = 306$  Oe [Zar 10].



**Figure III-1** : Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons  $((Pt/C_{0,4nm})_3/ IrMn)$  et  $((Pt/C_{0,4nm})_3/ Pt_{0,4nm}/ IrMn)$ .

### III.1.2 Multicouches avec : $t_{Co} = 0,4$ nm et $n = 7$

Afin de réaliser les analyses en sonde atomique tomographique, la séquence  $[(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3/ Pt_{tPt}/ IrMn_{7nm}]$  a été répétée sept fois. Pour pouvoir corréler les propriétés magnétiques et structurales des multicouches étudiées, des mesures magnétiques ont été effectuées sur les échantillons comportant sept séquences.

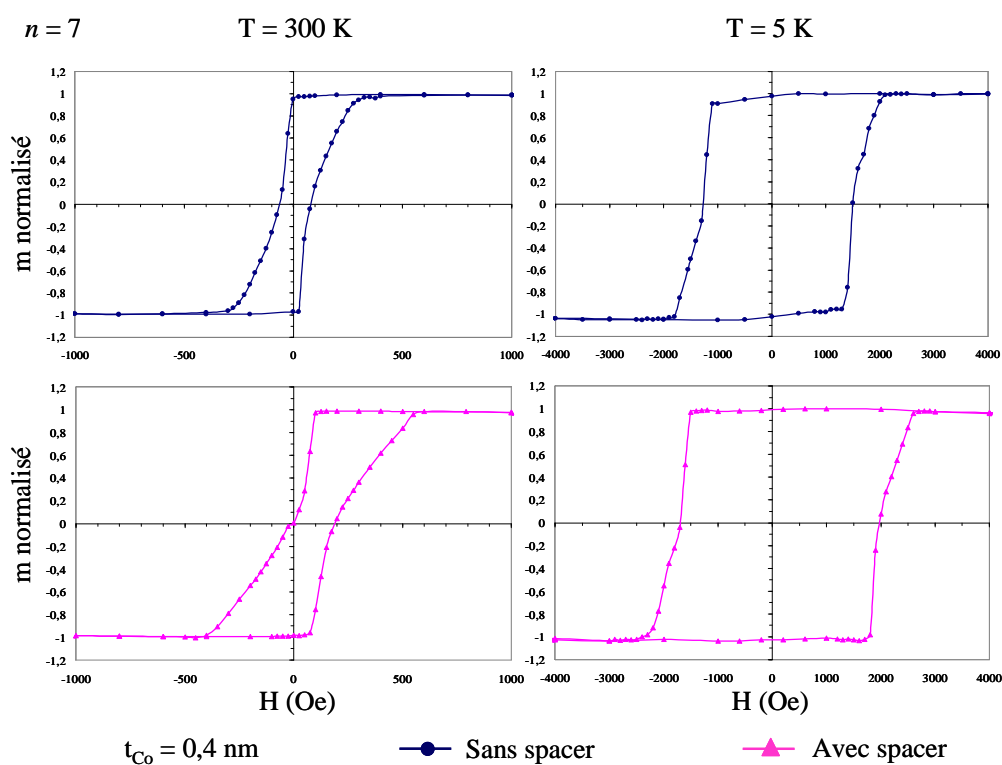
Les échantillons contenant sept séquences présentent des interfaces magnétiques de type  $Co/Pt_{tPt}/ IrMn$  mais aussi  $IrMn/Pt_{2nm}/ Co$  qui caractérisent respectivement les interfaces FM/AFM et AFM/FM [Sor 05b]. Etant donnée l'épaisseur importante de  $Pt$  (2 nm) située à l'interface  $IrMn/Pt_{2nm}/ Co$ , pour laquelle les moments magnétiques des couches  $IrMn$  et  $Co$  sont non couplés, on peut considérer que l'interaction d'échange est essentiellement due aux moments magnétiques localisés à l'interface  $Co/Pt_{tPt}/ IrMn$  (où l'épaisseur de  $Pt$  n'excède pas 0,4 nm) [Sor 05a].

La figure III-2 présente les cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons,  $[(Pt/C_{0,4nm})_3/ IrMn]_7$  et  $[(Pt/C_{0,4nm})_3/ Pt_{0,4nm}/ IrMn]_7$ . Nous pouvons observer que le



### III.1. Propriétés magnétiques des multicouches $[(Pt/C_{0,tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_n$

spacer de  $Pt$  conduit aussi à une augmentation du champ d'échange. A 300K,  $H_E = 12$  Oe pour  $t_{Pt} = 0$  nm, et 90 Oe pour  $t_{Pt} = 0,4$  nm. A 5K,  $H_E$  augmente pour atteindre 112 et 141 Oe respectivement pour  $t_{Pt} = 0$  et 0,4 nm. On observe aussi que tous les cycles sont penchés contrairement aux cycles des échantillons ne comportant qu'une seule séquence.

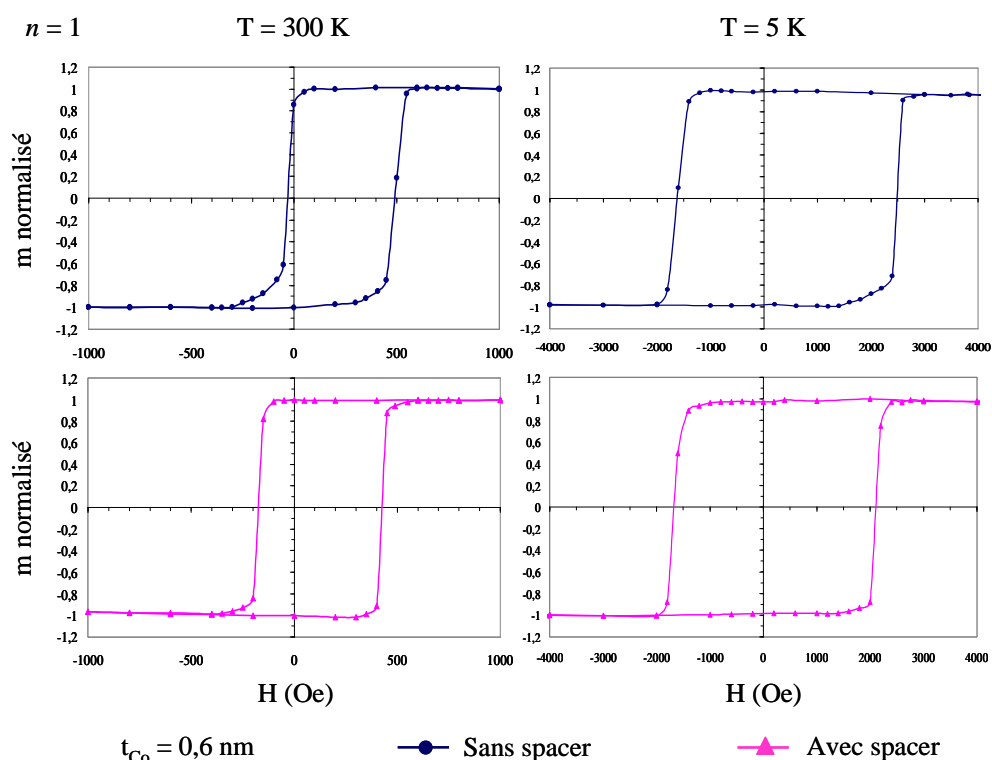


**Figure III-2 :** Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons  $[(Pt/C_{0,4nm})_3/IrMn]_7$  et  $[(Pt/C_{0,4nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$ .

#### III.1.3 Multicouches avec : $t_{Co} = 0,6$ nm et $n = 1$

Les cycles d'hystérésis des multicouches  $((Pt/C_{0,6nm})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  mesurés à 300 et 5K sont présentés sur la figure III-3.

Les deux échantillons présentent des cycles d'hystérésis carrés. Cependant, contrairement aux échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm, on observe ici que l'insertion du spacer de  $Pt$  entre la multicouche  $(Pt/Co)_3$  et la couche  $IrMn$  diminue la valeur du champ d'échange. A 300K,  $H_E = 230$  Oe pour  $t_{Pt} = 0$  nm et 125 Oe pour  $t_{Pt} = 0,4$  nm. A 5K,  $H_E$  augmente pour atteindre 434 et 218 Oe respectivement pour  $t_{Pt} = 0$  et 0,4 nm. On observe également que les valeurs du champ d'échange sont plus importantes à 5K qu'à 300K.



**Figure III-3** : Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons  $(Pt/Co_{0,6nm})_3/IrMn$  et  $(Pt/Co_{0,6nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn$ .

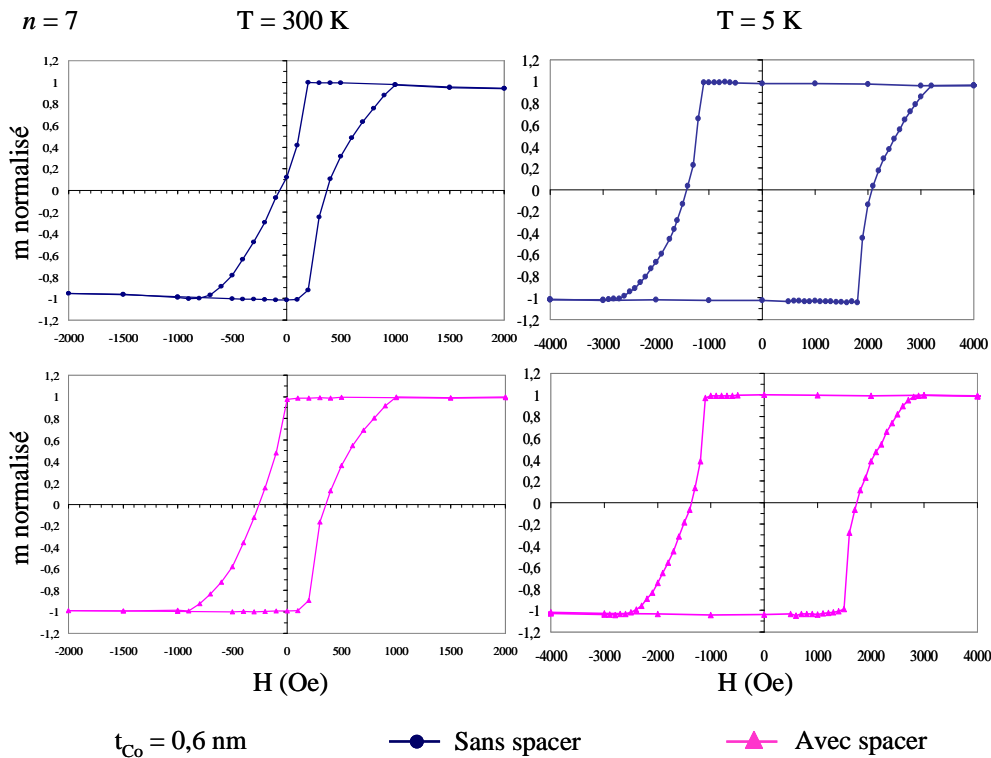
### III.1.4 Multicouches avec : $t_{Co} = 0,6\text{ nm}$ et $n = 7$

La figure III-4 montre les cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5K pour les échantillons sans et avec spacer de  $Pt$ .

La tendance observée est similaire à celle qui a été obtenue dans les multicouches à une seule séquence. A 300K,  $H_E = 151\text{ Oe}$  pour  $t_{Pt} = 0\text{ nm}$ , et  $55\text{ Oe}$  pour  $t_{Pt} = 0,4\text{ nm}$ . A 5K,  $H_E$  augmente pour atteindre 329 et 184 Oe respectivement pour  $t_{Pt} = 0$  et  $0,4\text{ nm}$ . De plus, on note que dans le cas de l'échantillon sans spacer de  $Pt$ , le champ d'échange est plus important pour  $t_{Co} = 0,6\text{ nm}$  que pour  $t_{Co} = 0,4\text{ nm}$ . Comme précédemment pour  $t_{Co} = 0,4\text{ nm}$ , les cycles à sept séquences sont penchés contrairement aux cycles à une seule séquence.

La compréhension de l'influence du spacer de  $Pt$  sur les propriétés magnétiques des multicouches nécessite de caractériser leur structure, et en particulier la structure des interfaces. Dans ce but, une première série d'analyses a été effectuée par réflectométrie de rayons X et diffraction de rayons X.

## III.2. Caractérisation structurale globale



**Figure III-4** : Cycles d'hystérésis mesurés à 300 et 5 K pour les échantillons  $[(Pt/C_{0,6nm})_3/IrMn]_7$  et  $[(Pt/C_{0,6nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$ .

## III.2 Caractérisation structurale globale

### III.2.1 Réflectométrie de rayons X aux petits angles

Les échantillons  $[(Pt/C_{0,4nm})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$ , pour  $t_{Pt} = 0$  et  $0,4$  nm, ont été étudiés par réflectométrie de rayons X aux petits angles afin d'obtenir des informations structurales sur les empilements des couches, ainsi que sur l'épaisseur et la rugosité des interfaces. Les courbes expérimentales ont été ajustées à l'aide du programme *SimulReflec* [Ott 06]. La qualité de l'ajustement est quantifiée par le coefficient  $\chi$ , calculé par la méthode des moindres carrés selon la relation [Ott 03] :

$$\chi^2 = \sum \frac{1}{\sigma_e^2} (R_{calc} - R_{exp})^2 \quad (\text{III-1})$$

où  $R_{calc}$  et  $R_{exp}$  sont respectivement les réflectivités calculée et expérimentale, et  $\sigma_e$  l'écart-type du bruit affectant chaque mesure. Le système est décrit par une série de couches distinctes, chacune étant caractérisée par son épaisseur, sa densité, les parties réelle et imaginaire du fac-

teur de diffusion atomique et sa rugosité. Il est à noter que le paramètre de rugosité ajusté par le programme peut également rendre compte d'un mélange atomique entre deux couches qui résulterait d'une interdiffusion. Nous avons effectué plusieurs simulations pour différents modèles de la structure en couches.

### III.2.1.1 Echantillon sans spacer de $Pt$

Le premier modèle considère sept séquences  $(Pt/Co)_3/IrMn$  toutes ajustées de façon identique. Les valeurs des épaisseurs,  $E$ , et des rugosités,  $\sigma$ , obtenues sont indiquées dans le tableau III-1. Les courbes de Réflectométrie expérimentale et calculée sont présentées sur la figure III-5.

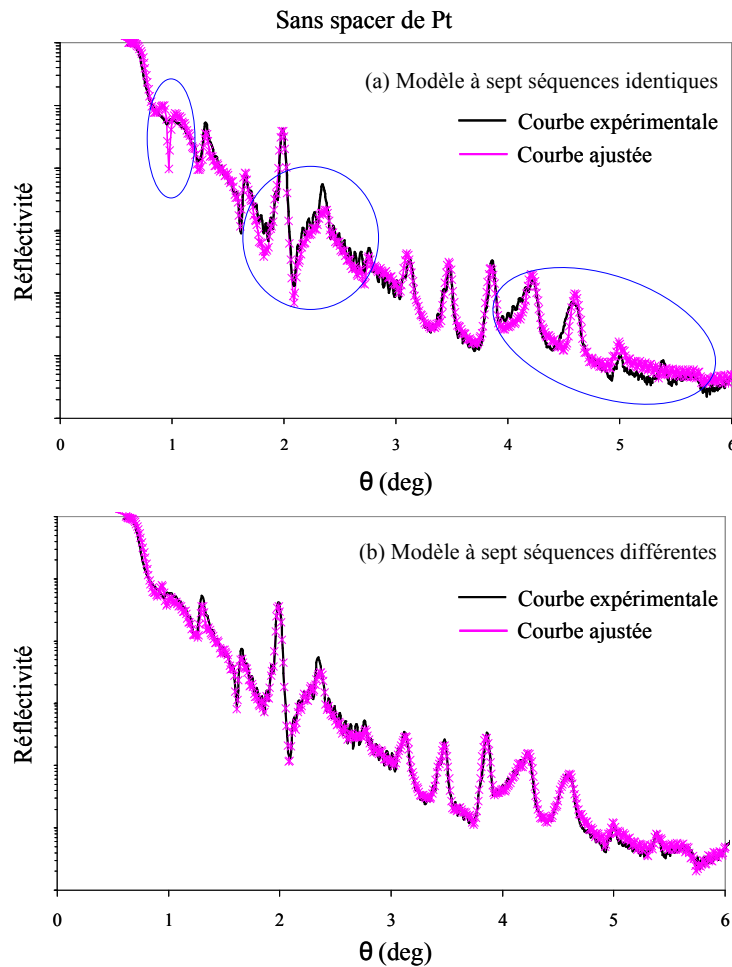
Afin d'identifier correctement les différentes couches, la première couche de  $Pt$  déposée est notée  $Pt_{(1)}$ , elle est suivie lors du dépôt, respectivement par les couches  $Co_{(1)}$ ,  $Pt_{(2)}$ ,  $Co_{(2)}$ ,  $Pt_{(3)}$ ,  $Co_{(3)}$ , la couche d' $IrMn$  étant déposée sur la couche  $Co_{(3)}$ . Dans le tableau III-1, on observe que les trois couches de  $Pt$  sont d'une épaisseur proche de  $2,1 \pm 0,1$  nm. Par contre l'épaisseur des couches de  $Co$  diminue lorsque l'on se rapproche de la couche  $IrMn$  et la rugosité de la couche  $Co_{(3)}$  est très élevée. Hormis les valeurs des épaisseurs des couches de  $Co$ , les valeurs des épaisseurs sont cohérentes avec les valeurs nominales qui sont  $t_{Pt} = 2$  nm,  $t_{Co} = 0,4$  nm et  $t_{IrMn} = 7$  nm.

**Tableau III-1 :** Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon sans spacer de  $Pt$  mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du premier modèle (sept séquences identiques).

Couches	$E(\text{nm}) \pm 0,1$	$\sigma (\text{nm}) \pm 0,1$
$Pt_{(1)}$	2,14	0,48
$Co_{(1)}$	0,35	0,42
$Pt_{(2)}$	2,12	0,33
$Co_{(2)}$	0,18	0,29
$Pt_{(3)}$	2,01	0,30
$Co_{(3)}$	0,08	1,65
$IrMn$	6,62	0,50

On observe sur la figure III-5 que la courbe expérimentale montre de nombreux pics qui caractérisent un empilement de couches bien définies. Les courbes expérimentale et ajustée sont globalement superposées, excepté pour les valeurs des angles autour de  $\theta = 1^\circ$ ,  $2^\circ$ ,  $4^\circ$  et  $5^\circ$  (cercles bleus sur la figure III-5(a)). L'écart entre les deux courbes est caractérisé par un coefficient  $\chi$ , égal à 49 pour ce modèle.

## III.2. Caractérisation structurale globale



**Figure III-5 :** Courbes expérimentale et ajustée de réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon sans spacer de Pt, (a) : selon le premier modèle (sept séquences identiques) (b) : selon le deuxième modèle (sept séquences différentes).

Dans le deuxième modèle, afin de prendre en compte l'évolution de l'épaisseur de  $Co$  sur la totalité de l'échantillon, les sept séquences ont été ajustées séparément. Les valeurs des épaisseurs et des rugosités pour les couches de  $Co$ , obtenues à partir de ce modèle sont présentées dans le tableau III-2. On observe que, les épaisseurs des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  sont relativement proches de leur valeur nominale. L'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  diminue très fortement au fur et à mesure que les séquences s'empilent et sa rugosité, pour toutes les séquences, est beaucoup plus élevée que celle des deux autres couches. Compte tenu du nombre important de paramètres intervenant dans ce modèle, les valeurs significatives de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches sont données par leurs valeurs moyennes, calculées sur les sept séquences. Ces valeurs sont indiquées dans le tableau III-3.

L'ajustement de la courbe expérimentale réalisé à l'aide de ce modèle est très satisfaisant,

**Tableau III-2 :** Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des couches de Co mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon sans spacer de Pt, déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes).

séquence	$Co_{(1)}$		$Co_{(2)}$		$Co_{(3)}$	
	$E(\text{nm})$	$\sigma(\text{nm})$	$E(\text{nm})$	$\sigma(\text{nm})$	$E(\text{nm})$	$\sigma(\text{nm})$
1	0,52	0,34	0,77	0,29	<b>0,46</b>	<b>0,29</b>
2	0,32	0,33	0,40	0,33	<b>0,33</b>	<b>1,00</b>
3	0,36	0,36	0,27	0,35	<b>0,22</b>	<b>1,39</b>
4	0,72	0,37	0,36	0,42	<b>0,34</b>	<b>1,39</b>
5	0,67	0,42	0,33	0,38	<b>0,15</b>	<b>1,39</b>
6	0,47	0,32	0,39	0,30	<b>0,14</b>	<b>1,39</b>
7	0,44	0,32	0,40	0,34	<b>0,02</b>	<b>1,39</b>

**Tableau III-3 :** Valeurs moyennes de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon sans spacer de Pt mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes).

Couches	$E(\text{nm}) \pm 0,1$	$\sigma (\text{nm}) \pm 0,1$
$Pt_{(1)}$	1,82	0,45
$Co_{(1)}$	0,50	0,35
$Pt_{(2)}$	1,97	0,48
$Co_{(2)}$	0,42	0,34
$Pt_{(3)}$	1,93	0,28
$Co_{(3)}$	0,28	1,18
$IrMn$	6,55	0,46

comme le montre la figure III-5(b). Le coefficient  $\chi$ , égal à 27, a très nettement diminué par rapport à l'ajustement précédent. Ce résultat montre que les sept séquences de l'échantillon ne sont pas strictement identiques. Cependant, quelque soit le modèle utilisé, l'analyse de la courbe de réflectométrie montre que l'épaisseur et la rugosité de la couche  $Co_{(3)}$  sont très différentes de celles des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ .

Le tableau III-3 montre que les épaisseurs moyennes des différentes couches sont proches des valeurs nominales, excepté pour la couche  $Co_{(3)}$  dont l'épaisseur est plus faible que la valeur nominale. Les rugosités moyennes des différentes couches sont proches de 0,4 nm, excepté là aussi pour la couche  $Co_{(3)}$  dont la rugosité est beaucoup plus importante. Compte tenu du nombre important de paramètres ajustés dans ce modèle, les incertitudes sur les valeurs d'épaisseur et de rugosité ne sont pas négligeables, malgré un ajustement correct de la courbe de réflectométrie. La faible épaisseur et la forte rugosité de la couche  $Co_{(3)}$  de l'échantillon

## III.2. Caractérisation structurale globale

sans spacer de Pt suggèrent qu'il existe un fort mélange entre cette couche et la couche *IrMn*.

### III.2.1.2 Echantillon avec spacer de *Pt*

Les mêmes modèles ont été appliqués à l'échantillon avec spacer de *Pt* pour caractériser l'effet du spacer sur la structure des multicouches. Comme précédemment, le premier modèle considère sept séquences  $(Pt/Co)_3/IrMn$  identiques. Le tableau III-4 présente les valeurs des épaisseurs  $E$  et des rugosités  $\sigma$  obtenues pour cet échantillon. On observe que les couches de *Pt* sont d'épaisseur proche de  $1,9 \pm 0,1$  nm. Contrairement au cas précédent (échantillon sans spacer de *Pt*), l'épaisseur des trois couches de *Co* est pratiquement identique ( $0,30 \pm 0,1$  nm). La rugosité de la dernière couche de *Co* n'est que très légèrement plus élevée que celle des deux autres couches de *Co*. Les valeurs des épaisseurs de toutes les couches sont cohérentes avec les valeurs nominales.

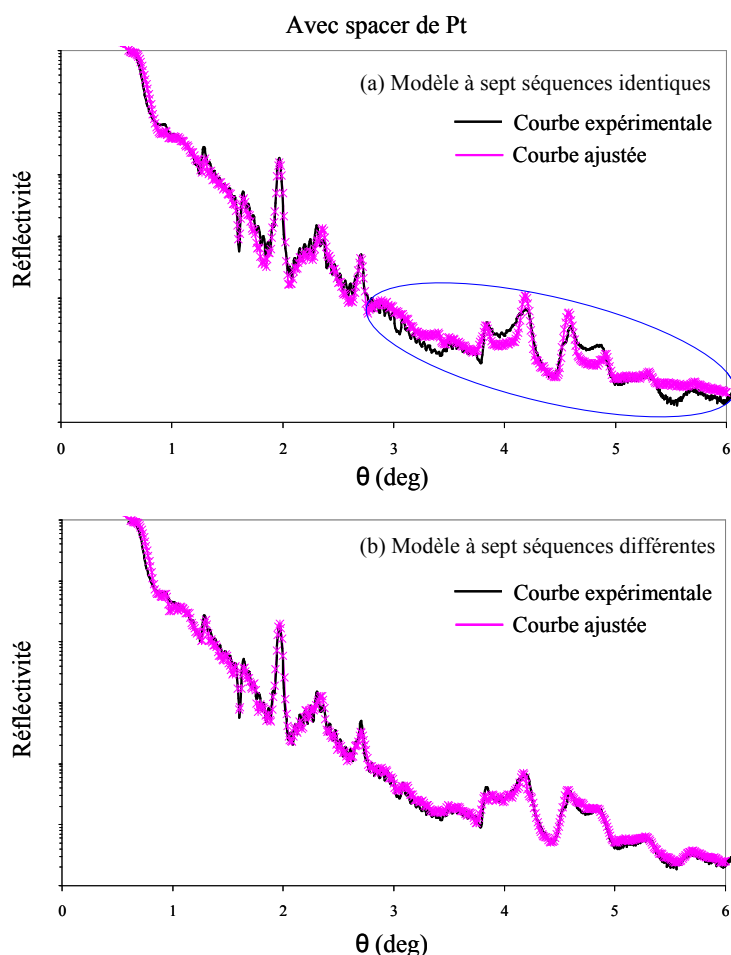
**Tableau III-4 :** Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon avec spacer de *Pt* mesurées par réflectométrie de rayons X aux petits angles, déduites du premier modèle (sept séquences identiques).

Couches	$E(\text{nm}) \pm 0,1$	$\sigma (\text{nm}) \pm 0,1$
<i>Pt</i> <sub>(1)</sub>	1,82	0,46
<i>Co</i> <sub>(1)</sub>	0,31	0,36
<i>Pt</i> <sub>(2)</sub>	2,02	0,35
<i>Co</i> <sub>(2)</sub>	0,28	0,34
<i>Pt</i> <sub>(3)</sub>	1,97	0,32
<i>Co</i> <sub>(3)</sub>	0,29	0,74
Spacer de <i>Pt</i>	0,53	0,39
<i>IrMn</i>	6,38	0,58

La figure III-6(a) présente les courbes expérimentale et ajustée obtenues à partir de ce modèle. On observe que la courbe expérimentale est mal ajustée, principalement pour  $\theta > 3^\circ$ . Le coefficient  $\chi$  caractérisant l'écart entre les deux courbes est pour ce modèle égal à 48.

Les épaisseurs et les rugosités ont ensuite été déterminées en ajustant les sept séquences séparément (deuxième modèle). Les valeurs obtenues pour les couches de *Co* sont indiquées dans le tableau III-5. On observe que l'épaisseur de la couche *Co*<sub>(3)</sub> est proche de celle des couches *Co*<sub>(1)</sub> et *Co*<sub>(2)</sub> pour toutes les séquences. Toutes les épaisseurs sont cohérentes avec les valeurs nominales. Pour toutes les séquences, la rugosité de la couche *Co*<sub>(3)</sub> est, pour ce modèle également, légèrement plus élevée que celles de deux autres couches. Le tableau III-6 donne les moyennes des valeurs des épaisseurs et des rugosités obtenues pour toutes les couches, *Pt*,

$Co$ ,  $IrMn$  et spacer de  $Pt$ . Pour cet échantillon, toutes les épaisseurs sont cohérentes avec les valeurs nominales.



**Figure III-6 :** Courbes expérimentale et ajustée de réflectométrie de rayons X aux petits angles pour l'échantillon avec spacer de  $Pt$ , (a) : selon le premier modèle (sept séquences identiques) (b) : selon le deuxième modèle (sept séquences différentes).

L'ajustement de la courbe expérimentale, présenté figure III-6(b), est très satisfaisant. Le coefficient  $\chi$  est égal à 26, valeur nettement inférieure à celle obtenue à partir de premier modèle. Comme dans le cas de l'échantillon sans spacer de  $Pt$ , ce résultat montre que les sept séquences ne sont pas strictement identiques.

Il est à noter que les valeurs de l'épaisseur et de la rugosité du spacer de  $Pt$  sont égales (tableau III-6). Ceci pourrait indiquer que le spacer de  $Pt$  est mélangé avec des atomes des couches voisines.



## III.2. Caractérisation structurale globale

**Tableau III-5 :** Valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des couches de *Co* mesurées par réflectométrie de rayons *X* aux petits angles pour l'échantillon avec spacer de *Pt*, déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes).

séquence	<i>Co</i> <sub>(1)</sub>		<i>Co</i> <sub>(2)</sub>		<i>Co</i> <sub>(3)</sub>	
	<i>E</i> (nm)	$\sigma$ (nm)	<i>E</i> (nm)	$\sigma$ (nm)	<i>E</i> (nm)	$\sigma$ (nm)
1	0,55	0,36	0,48	0,42	0,33	0,53
2	0,16	0,41	0,19	0,36	0,32	0,76
3	0,22	0,49	0,35	0,47	0,40	0,88
4	0,59	0,40	0,38	0,47	0,39	1,24
5	0,51	0,45	0,30	0,50	0,33	0,93
6	0,29	0,28	0,26	0,28	0,35	0,86
7	0,50	0,44	0,26	0,40	0,24	0,92

**Tableau III-6 :** Valeurs moyennes de l'épaisseur et de la rugosité des différentes couches de l'échantillon avec spacer de *Pt* mesurées par réflectométrie de rayons *X* aux petits angles, déduites du deuxième modèle (sept séquences différentes)

Couches	<i>E</i> (nm) $\pm$ 0,1	$\sigma$ (nm) $\pm$ 0,1
<i>Pt</i> <sub>(1)</sub>	1,85	0,52
<i>Co</i> <sub>(1)</sub>	0,40	0,40
<i>Pt</i> <sub>(2)</sub>	2,00	0,47
<i>Co</i> <sub>(2)</sub>	0,32	0,41
<i>Pt</i> <sub>(3)</sub>	1,88	0,40
<i>Co</i> <sub>(3)</sub>	0,34	0,87
Spacer de <i>Pt</i>	0,45	0,44
<i>IrMn</i>	6,35	0,51

### III.2.1.3 Comparaison des deux échantillons

L'analyse par réflectomètre de rayons *X* montre clairement que la différence entre les deux échantillons (avec et sans spacer de *Pt*) réside dans le structure de la couche *Co*<sub>(3)</sub>. Dans l'échantillon sans spacer, la couche *Co*<sub>(3)</sub> se révèle être très diffuse. La valeur élevée de la rugosité donnée par les ajustements effectués est très probablement la signature d'un mélange chimique important entre les atomes de *Co*, *Ir* et *Mn* à l'interface *Co/IrMn*. Un tel mélange n'est pas observé dans l'échantillon avec spacer, pour lequel la structure de la couche *Co*<sub>(3)</sub> est identique à celle des couches *Co*<sub>(1)</sub> et *Co*<sub>(2)</sub>.

Cependant, pour les couches *Co*<sub>(1)</sub> et *Co*<sub>(2)</sub>, les valeurs de l'épaisseur sont comparables aux valeurs de la rugosité (tableaux III-3 et III-6). Ceci pourrait être la signature d'un mélange entre atomes de *Co* et de *Pt* dans la multicouche (*Pt/Co*)<sub>3</sub>.

### III.2.2 Diffraction de rayons X aux grands angles

La diffraction de rayons X a été utilisée pour identifier la nature et la structure des multicouches déposées. Le diffractomètre Bruker D8 a été utilisé en configuration  $\theta$ - $2\theta$ , la raie  $K_\beta$  étant éliminée par un miroir de Göbel.

Le traitement des diffractogrammes a été effectué à l'aide du logiciel **WinPLOTR** [Roi 01]. Ce logiciel permet de visualiser les diffractogrammes puis de procéder à un ajustement de chaque pic par un habillage constitué de gaussiennes et de lorentziennes. Les principaux paramètres d'ajustement obtenus sont les positions de chaque pic ainsi que leur largeur à mi-hauteur.

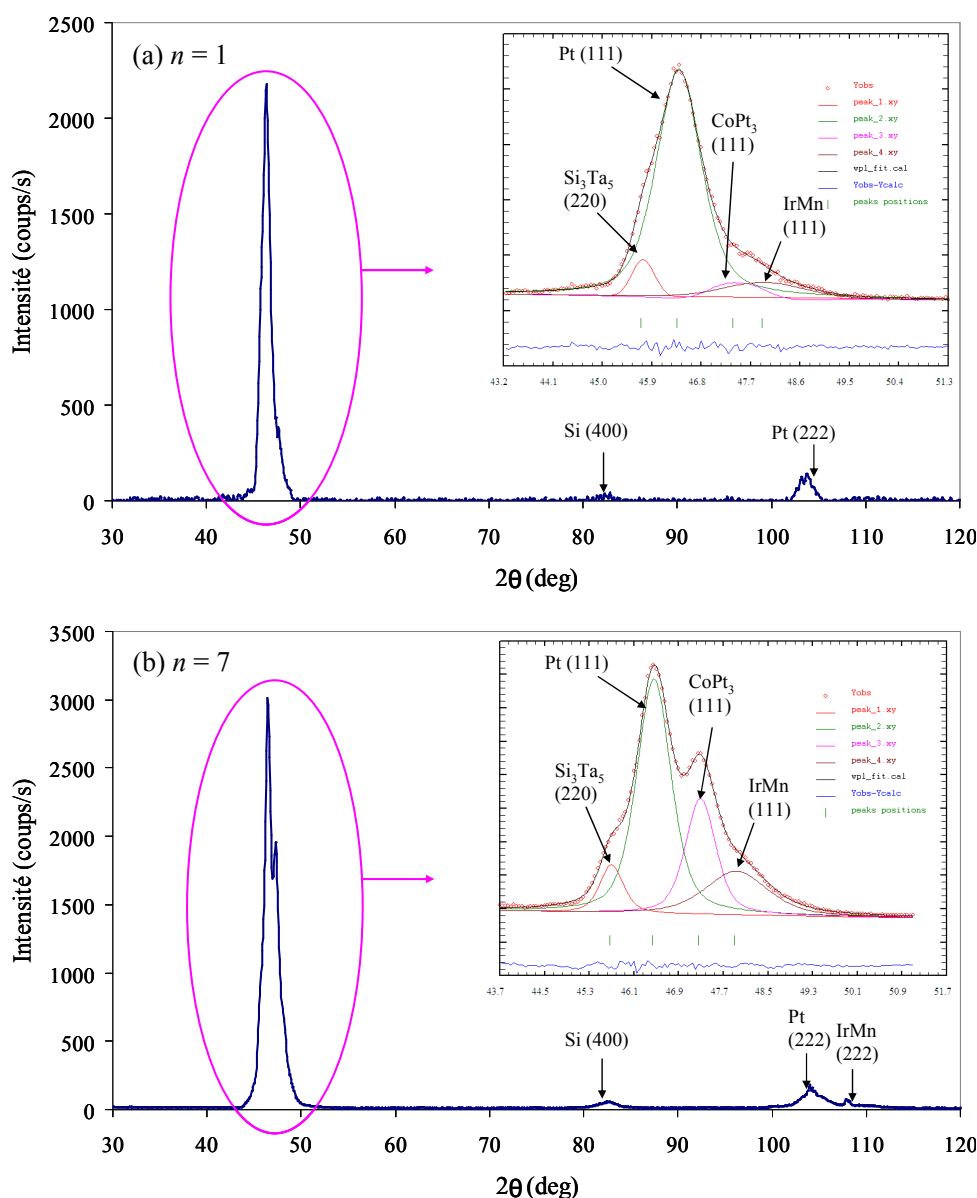
Afin de connaître plus précisément la cristallographie des échantillons étudiés, nous avons effectué des mesures de diffraction de rayons X aux grands angles sur les échantillons  $Ta_{3nm}/[(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}]_n/Pt_{10nm}$ , pour  $t_{Pt} = 0$  et  $0,4$  nm et  $n = 1$  et  $7$ . La figure III-7(a) présente le diffractogramme obtenu pour l'échantillon sans spacer comportant une seule séquence. En insert est présenté la déconvolution du pic principal effectuée par le logiciel **WinPLOTR**.

Ce diffractogramme fait apparaître les pics (111) caractéristiques des phases cubiques à faces centrées du  $Pt$  et de l'alliage  $Ir_{20}Mn_{80}$  ainsi que le pic (222) du  $Pt$ . Le pic  $Si(400)$  caractéristique du substrat de Si orienté (100) (phase cfc) est aussi visible. La déconvolution du pic principal montre que celui-ci résulte de la superposition des pics (111) caractéristiques du  $Pt$  (cfc), du composé  $CoPt_3$  (cubique), de l'alliage  $Ir_{20}Mn_{80}$  et du composé  $Si_3Ta_5$  (quadratique centré). La présence du pic (111) du composé  $CoPt_3$  pourrait être liée à l'existence d'un mélange entre atomes de  $Co$  et de  $Pt$  dans la multicouche ferromagnétique  $(Pt/Co)_3$ , en accord avec la littérature [Cho 92]. La présence du pic (220) du composé  $Si_3Ta_5$  est attribuée à un mélange entre le  $Ta$  et le  $Si$  entre le substrat et la multicouche magnétique.

Aucune différence notable entre les diffractogrammes des échantillons avec et sans spacer n'est obtenue. Ce qui indique que la différence de structure révélée par réflectométrie X entre ces deux échantillons n'est pas observable par diffraction X aux grands angles.

Le diffractogramme de l'échantillon comportant sept séquences montre des résultats sensiblement identiques (figure III-7(b)). Cependant, on observe que le pic caractéristique de la phase  $CoPt_3$  est plus intense pour sept séquences que pour une seule séquence. Ce pic étant attribué à un mélange entre le  $Co$  et le  $Pt$  dans la multicouche  $(Pt/Co)_3$ , l'augmentation de son intensité avec le nombre de séquences correspond à une quantité plus importante de zones de mélange  $Co$ - $Pt$ , c'est-à-dire à une épaisseur de matière plus importante. En effet, dans l'échantillon comportant une seule séquence l'épaisseur de matière correspondant à ce mélange, est plus faible que dans l'échantillon comportant sept séquences.

## III.2. Caractérisation structurale globale



**Figure III-7 :** Diffractogramme de rayons X de la multicouche  $Ta_{3nm}/[(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3/Pt_tPt/IrMn_{7nm}]_n/Pt_{10nm}$  (a)  $n = 1$  et (b)  $n = 7$ . En insert : déconvolution du pic principal par WinPLOTR.

Le tableau III-7 présente les positions et la distance réticulaire de chaque pic observé dans les échantillons sans spacer de *Pt* comportant une et sept séquences.

Les résultats de réflectométrie X montrent pour la multicouche sans spacer de *Pt* l'existence d'un mélange atomique entre les atomes de *Co*, *Mn* et *Ir* à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ . Ce mélange n'est pas observé par diffraction X aux grands angles. Par contre, la diffraction X aux grands angles met en évidence dans les multicouches avec et sans spacer de *Pt* un mélange

entre les atomes de  $Co$  et de  $Pt$  dans les multicouches  $(Pt/Co)_3$  constituant une phase riche en  $Pt$  très proche de la phase  $CoPt_3$ . Le mélange  $Pt-Co$ , mis en évidence ici, confirme ce qui a été suggéré par les analyses en Réflectométrie X.

**Tableau III-7 :** Position et distance réticulaire des pics observés des échantillons sans spacer de  $Pt$  comportant une et sept séquences.

Pics	1 séquence		7 séquences	
	Position	Distance réticulaire	Position	Distance réticulaire
$Si_3Ta_5$ QC (220)	45,69°	0,230 nm	45,66°	0,230 nm
$Pt$ CFC (111)	46,36°	0,227 nm	46,42°	0,227 nm
$CoPt_3$ C (111)	47,37°	0,223 nm	47,25°	0,223 nm
$IrMn$ CFC (111)	47,90°	0,220 nm	47,89°	0,220 nm

### III.3 Discussion

Les valeurs de champ d'échange  $H_E$  et de l'aimantation à saturation  $M_S$  déduites des cycles d'hystérésis à 5 et 300K obtenus pour les différents échantillons sont présentés dans les tableaux III-8 et III-9. Les valeurs de  $M_S$  sont obtenues par la division du moment magnétique mesuré au SQUID par le volume de l'échantillon. L'épaisseur de l'échantillon, utilisé dans le calcul du volume, correspond à l'épaisseur des couches magnétiques, c'est-à-dire à l'épaisseur nominale des couches de  $Co$ .

**Tableau III-8 :** Valeurs de champ d'échange,  $H_E$ , à 5 et 300K pour tous les échantillons analysés.

$H_E$ (Oe)		$t_{Co} = 0,4$ nm		$t_{Co} = 0,6$ nm	
		$t_{Pt} = 0$ nm	$t_{Pt} = 0,4$ nm	$t_{Pt} = 0$ nm	$t_{Pt} = 0,4$ nm
300K	$n = 1$	17	115	230	125
	$n = 7$	12	95	151	55
5K	$n = 1$	138	306	434	218
	$n = 7$	112	141	329	184

A la lumière des résultats de l'étude structurale, nous allons interpréter les propriétés magnétiques en tenant compte de l'influence du spacer de  $Pt$  et de l'influence de l'épaisseur de la couche de  $Co$ .

### III.3. Discussion

**Tableau III-9 :** Valeurs de l'aimantation à saturation  $M_S$ , à 5 et 300K pour tous les échantillons analysés.

$M_S$ ( $\mu\text{em}/\text{cm}^3$ )		$t_{Co} = 0,4$ nm		$t_{Co} = 0,6$ nm	
		$t_{Pt} = 0$ nm	$t_{Pt} = 0,4$ nm	$t_{Pt} = 0$ nm	$t_{Pt} = 0,4$ nm
300K	$n = 1$	$673 \pm 34$	$949 \pm 48$	$1051 \pm 53$	$1100 \pm 55$
	$n = 7$	$765 \pm 38$	$1025 \pm 51$	$1093 \pm 55$	$1208 \pm 60$
5K	$n = 1$	$1239 \pm 62$	$1332 \pm 67$	$1261 \pm 63$	$1333 \pm 67$
	$n = 7$	$1262 \pm 63$	$1474 \pm 74$	$1296 \pm 65$	$1458 \pm 73$

#### III.3.1 Influence du spacer de $Pt$ sur le champ d'échange

On observe dans le tableau III-8, que pour  $t_{Co} = 0,4$  nm, le champ d'échange  $H_E$  présente une forte augmentation lors de l'insertion du spacer de  $Pt$  à l'interface FM/AFM. L'augmentation du champ d'échange est due à l'amélioration de l'orientation des spins de la dernière couche de  $Co$  dans les multicouches  $(Pt/Co)_3$ , amélioration liée à l'addition d'une interface supplémentaire  $Co/Pt$  et à l'énergie d'interface additionnelle d'anisotropie perpendiculaire qui en résulte [Sor 05a, Sor 05b]. En effet, l'anisotropie perpendiculaire induite par l'interface  $Co/Pt$  est plus forte que celle induite par une interface  $Co/IrMn$  [Mor 05]. Ainsi, l'insertion d'une couche de  $Pt$  permet d'augmenter l'anisotropie perpendiculaire et par conséquent le champ d'échange. Elle éloigne cependant les couches FM et AFM, perturbe l'interaction d'échange à courte distance à l'interface et par conséquent diminue le champ d'échange. Ces deux effets coexistent pour les multicouches  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm.

Les analyses structurales par Réflectométrie X suggèrent l'existence d'un mélange entre les atomes de  $Co$ ,  $Ir$  et  $Mn$  à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  dans l'échantillon sans spacer de  $Pt$  qui n'est pas observé dans l'échantillon avec spacer. Le spacer de  $Pt$  a donc probablement pour effet de réduire le mélange entre les atomes de  $Co$ , d' $Ir$  et de  $Mn$  à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ . Ceci pourrait expliquer l'augmentation de l'anisotropie perpendiculaire et en conséquence l'augmentation du champ d'échange pour la multicouche dont l'épaisseur de  $Co$  est de  $0,4$  nm.

#### III.3.2 Influence de l'épaisseur des couches de $Co$ sur le champ d'échange

Les valeurs du champ d'échange des échantillons sans spacer de  $Pt$  avec  $t_{Co} = 0,6$  sont plus élevées que celles avec  $t_{Co} = 0,4$  nm. Or, on sait d'après le modèle de *Meiklejohn and Bean* (et des modèles plus récents) que  $H_E$  est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche de  $Co$ . Le résultat obtenu n'est donc pas conforme aux modèles de  $H_E$  existants. Cependant, les résultats de Réflectométrie X, pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm suggèrent l'existence

d'un mélange atomique à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ .

L'augmentation de l'épaisseur de la couche de  $Co$  de 0,4 à 0,6 nm réduit-il le mélange à l'interface ? Afin de répondre à cette question, des analyses nanostructurales à l'échelle atomique par sonde atomique tomographique ont été effectuées sur les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  et 0,6 nm. Les résultats de ces analyses sont présentés dans le chapitre suivant.

### III.3.3 Influence sur l'aimantation à saturation

Les valeurs de  $M_S$  sont présentées dans le tableau III-9. La précision sur les mesures est estimée à  $\pm 5\%$ . La résolution du SQUID est égale à  $10^{-8}$  uem, valeur bien inférieure à la valeur mesurée à la saturation pour tous nos échantillons, de l'ordre de  $2 \times 10^{-5}$  uem. L'erreur estimée sur les valeurs de  $M_S$ , en  $uem.cm^{-3}$ , est donc principalement due à l'erreur sur l'estimation du volume de nos échantillons.

On observe que l'insertion d'un spacer de  $Pt$  induit une augmentation de  $M_S$  à toute température, quelle que soient l'épaisseur de la couche de  $Co$  et le nombre de séquences d'empilement. A 5K, l'augmentation de  $M_S$  est comparable pour les deux épaisseurs de la couche de  $Co$ . En revanche, à 300K, l'augmentation observée est bien plus élevée pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm que pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,6$  nm. Ceci est dû au fait que les valeurs de  $M_S$  mesurées à 300K pour les échantillons sans spacer de  $Pt$  sont plus faibles dans les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  nm que dans celles avec  $t_{Co} = 0,6$  nm. Ceci peut être attribué au fait que la température de Curie des multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  nm est plus faible qu'avec  $t_{Co} = 0,6$  nm [Met 07]. Les différences entre les valeurs de  $M_S$  pour  $n = 7$  et  $n = 1$  sont bien dans les barres d'erreur [Zar 10].

### III.3.4 Influence du nombre de séquences ( $[Pt_{2nm}/Co_{tCo}]_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$ )

Nous pouvons observer que les cycles d'hystérésis des échantillons comportant sept séquences  $[Pt_{2nm}/Co_{tCo}]_3/Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$  sont inclinés alors que les échantillons contenant une seule séquence présentent des cycles d'hystérésis carrés, figures III-2 et III-4. De plus, les valeurs de  $H_E$  pour  $n = 7$  sont plus faibles que celles pour  $n = 1$ , tableau III-8. On peut également observer que l'échantillon avec spacer de  $Pt$  ( $t_{Co} = 0,4$  nm à 300K) montre une plus faible susceptibilité, i.e. un cycle plus incliné que l'échantillon sans spacer de  $Pt$ . Une telle inclinaison conduisant à une valeur plus faible de la susceptibilité est une autre manifestation de l'augmentation de l'anisotropie perpendiculaire, due à l'insertion d'un spacer de  $Pt$ .

Il est connu que le renversement d'aimantation d'une couche magnétique dépend très fortement de son épaisseur [Has 90, Kit 46]. Gehanno et al ont montré que la susceptibilité à

### III.3. Discussion

l'équilibre diminue exponentiellement lorsque l'épaisseur de la couche magnétique augmente et que ceci résulte d'un équilibre entre l'énergie magnétostatique et l'énergie de paroi de domaines [Geh 97]. Cet effet peut aussi être traité en termes d'épaisseur critique de la couche FM au dessus de laquelle la configuration magnétique monodomaine ne l'emporte plus sur la configuration magnétique multidomaine [Has 90, Hel 07, Kit 46].

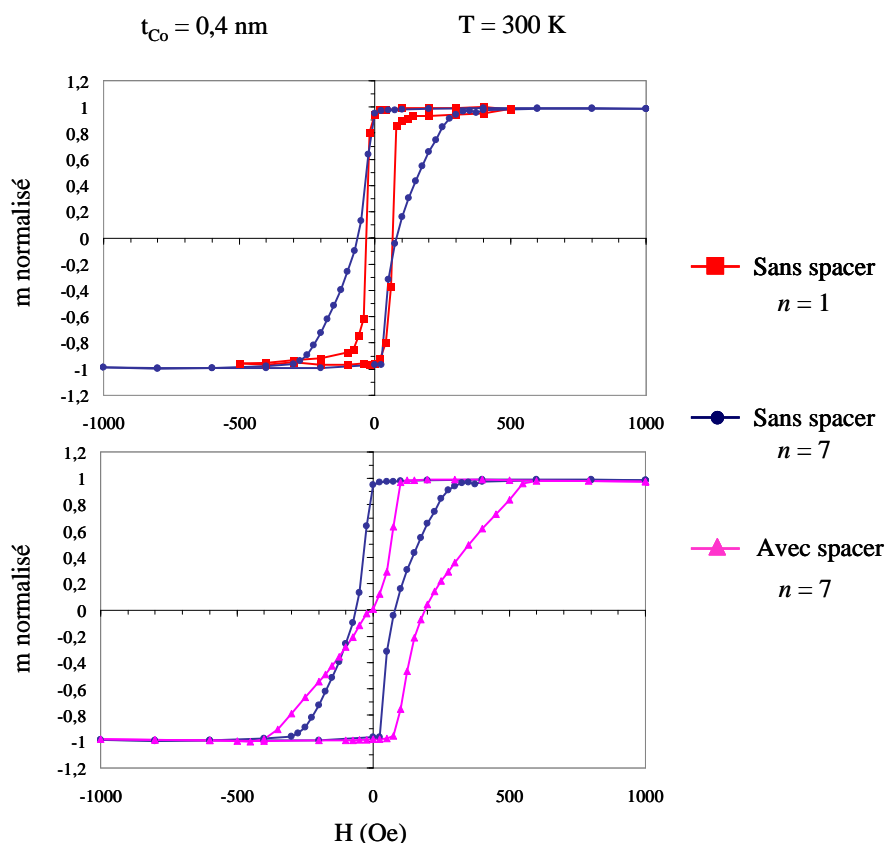
Nos échantillons peuvent être vus comme sept  $(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3$  multicouches séparées par des bicouches  $Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$ . Les multicouches  $(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3$  sont très vraisemblablement couplées magnétiquement en raison de la faible épaisseur ( $\approx 7$  nm) des bicouches  $Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$  :

- i - via la formation de domaines à l'intérieur des couches  $IrMn_{7nm}$  [Cam 03]
- ii - via des termes d'énergie magnétostatique qui favorisent une configuration multidomaine, comme détaillé dans les travaux de Baltz et al. [Bal 07].

Dans le cas de multicouches  $(Pt/Co)_m$  et  $(Pt/Co)_n$  similaires aux nôtres et séparées par un spacer de  $Pt$ , d'épaisseur variable (de 4 nm à 100 nm), il a été montré que le couplage magnétostatique entre les multicouches  $(Pt/Co)_m$  et  $(Pt/Co)_n$  influe très fortement sur le renversement d'aimantation macroscopique de l'empilement complet et favorise la formation d'une configuration magnétique multidomaine. En raison de ces interactions magnétostatiques, le système se comporte comme une monocouche d'épaisseur magnétique effective augmentée [Bal 07].

De façon similaire, nos sept multicouches  $(Pt_{2nm}/Co_{tCo})_3$  sont magnétostatiquement couplées entre elles via les bicouches  $Pt_{tPt}/IrMn_{7nm}$  qui tendent aussi à favoriser la formation d'une configuration magnétique multidomaine. L'empilement total se comporte là aussi comme un échantillon d'épaisseur magnétique effective augmentée. Il en résulte ainsi que, pour les échantillons comportant sept séquences, la susceptibilité magnétique est plus faible que celle des échantillons comportant une seule séquence, figures III-8.

Pour les échantillons à  $t_{Co} = 0,4$  nm et  $n = 7$ , l'insertion du spacer de  $Pt$  améliore l'orientation perpendiculaire des moments magnétiques de la dernière couche de  $Co$  dans la multicouche  $(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3$ . Il en résulte ainsi que les champs magnétiques rayonnés en dehors du plan, qui apparaissent lorsque le système est dans une configuration magnétique multidomaine ( $n = 7$ ), sont beaucoup plus intenses pour l'échantillon avec spacer ( $t_{Pt} = 0,4$  nm) que pour l'échantillon sans spacer ( $t_{Pt} = 0$  nm). L'échantillon avec spacer présente ainsi des interactions magnétostatiques beaucoup plus fortes que l'échantillon sans spacer conduisant à l'observation d'une susceptibilité plus faible, i.e. un cycle plus incliné, figure III-8. En d'autres termes, pour l'échantillon avec spacer, les champs rayonnés par les sept multicouches  $(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3$



**Figure III-8** : Cycles d'hystérésis mesurés à 300K pour les échantillons  $(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn$ ,  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$  et  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$ .

conduisent à un couplage magnétostatique beaucoup plus fort qui favorise une configuration magnétique multidomaine de l'ensemble de l'échantillon.

### III.4 Conclusion du chapitre III

Nous avons observé que l'insertion d'un spacer de  $Pt$  d'épaisseur  $t_{Pt} = 0,4 \text{ nm}$  dans les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$  augmente les valeurs du champ d'échange et de l'aimantation à saturation, en accord avec les résultats de la littérature. Cependant, cet effet n'a pas été observé pour une épaisseur de  $Co$  plus importante (échantillons avec  $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$ ). En effet, lorsque l'épaisseur de la couche de  $Co$  augmente, l'addition d'un spacer de  $Pt$  provoque une diminution de la valeur du champ d'échange. D'autre part, les valeurs de  $H_E$  et de  $M_S$  des échantillons sans spacer sont toujours plus élevées pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$  que pour celles avec  $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ .  $H_E$  étant inversement proportionnel à  $t_{Co}$  et  $M_S$  [Mei 62], ce résultat va



### III.4. Conclusion du chapitre III

---

donc à l'encontre du résultat attendu.

Les résultats de réflectométrie de rayons X aux petits angles montrent que, dans l'échantillon sans spacer de *Pt*, l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  est très faible et sa rugosité beaucoup plus élevée que celle de deux autres couches de *Co*, suggérant un fort mélange entre la couche  $Co_{(3)}$  et la couche *IrMn*. Par contre, dans l'échantillon avec spacer de *Pt* l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  est proche de celle de deux autres couches de *Co* et sa rugosité est beaucoup plus faible que dans l'échantillon sans spacer. Cela suggère que le spacer de *Pt* a pour effet de réduire le mélange entre les atomes de *Co* de la couche  $Co_{(3)}$  et les atomes d'*Ir* et *Mn* à l'interface *Co/IrMn*. De plus, dans les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ , et pour les deux échantillons, les valeurs des épaisseurs et des rugosités sont proches. Ceci indique que les couches de *Co* ne sont pas pures, mais mélangées avec les atomes de *Pt*.

Les résultats de diffraction X aux grands angles montrent un mélange entre les atomes de *Co* et de *Pt* dans les multicouches  $(Co/Pt)_3$ , confirmant les résultats de réflectométrie, mélange dont les caractéristiques sont proches de celles de la phase  $CoPt_3$ .

Ainsi, les propriétés magnétiques des multicouches analysées dépendent à la fois de la présence d'un spacer de *Pt* et de l'épaisseur des couches de *Co*. La compréhension de l'influence de ces deux paramètres structuraux sur les propriétés magnétiques des multicouches nécessite de caractériser leur structure, et en particulier la structure des interfaces. Dans ce but, les échantillons ont été analysés par sonde atomique tomographique. Les résultats sont présentés au chapitre suivant.

## CHAPITRE IV

# **Caractérisation à l'échelle atomique par sonde atomique tomographique**

### Introduction

Ce chapitre présente les résultats des analyses des multicouches  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$  par sonde atomique tomographique. La première partie présente en détails, à travers les résultats obtenus sur l'échantillon  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ , le procédé de reconstruction utilisé dans cette étude ainsi que les résultats de simulation qui ont permis de comprendre les différentes sources d'artefacts et d'interpréter au mieux les résultats expérimentaux. La seconde partie de ce chapitre présente les résultats obtenus sur l'ensemble des échantillons étudiés. La troisième et dernière partie présente les corrélations effectuées, à la lumière des informations obtenues, entre les propriétés magnétiques et la nanostructure des échantillons.

## IV.1 Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations

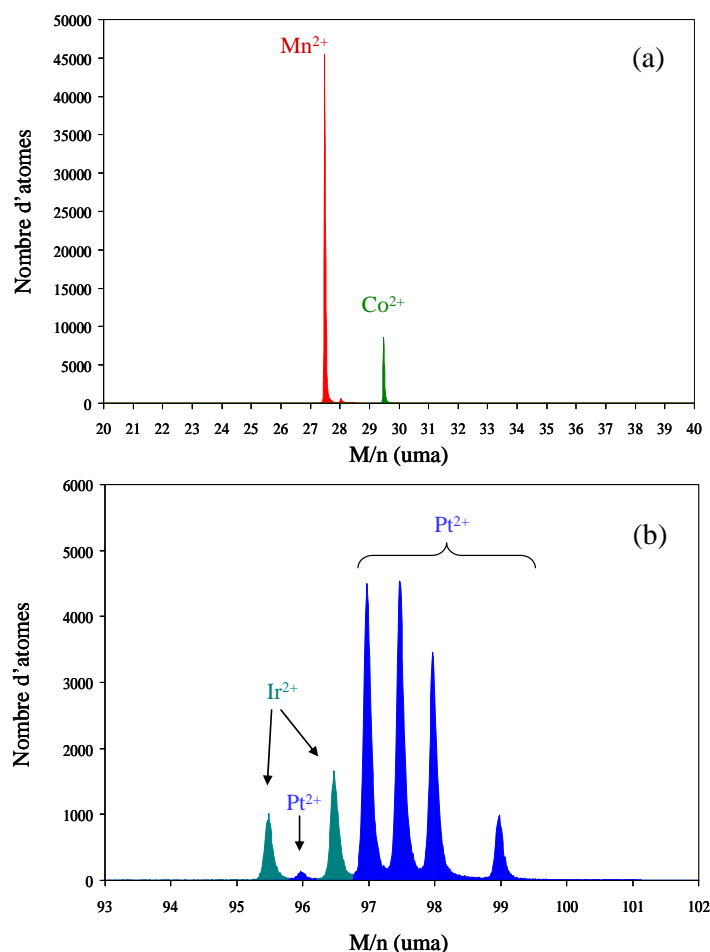
### IV.1.1 Conditions des analyses

Toutes les analyses en sonde atomique tomographique ont été effectuées à 80K, en utilisant une sonde assistée par laser femtoseconde. La longueur d'onde utilisée est  $\lambda = 515$  nm (vert) et la puissance laser a été fixée à 4 mW pour un diamètre du " spot " laser de l'ordre de 50  $\mu$ m. Dans ces conditions, l'analyse des multicouches  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$  permet d'obtenir un spectre de masse dont la résolution est suffisante pour distinguer les différents pics (figure IV-1). Les pics correspondant au Mn et au Co, (figure IV-1(a)) ainsi qu'à l'Ir et au Pt (figure IV-1(b)) sont donc clairement visibles. La qualité des spectres de masse obtenus a permis de mesurer précisément la composition chimique des échantillons analysés.

### IV.1.2 Protocole de reconstruction 3D

Les méthodes de reconstruction des volumes analysés par la sonde atomique tomographique ont été détaillées dans les thèses [Bas 97, Geu 05, Vur 01] et rappelées au chapitre II. La méthode standard est basée sur l'hypothèse que l'évaporation des atomes de surface de l'échantillon se produit par effet de champ, atome par atome et couche atomique par couche atomique. La reconstruction 3D consiste à calculer la position (x,y,z) de chaque atome dans le volume analysé. Les coordonnées (x,y) sont calculées à partir des coordonnées des impacts sur le détecteur et la profondeur (z) est déduite de l'ordre de détection des atomes [Bas 95].

La sonde atomique tomographique étant un microscope à projection ponctuelle, la transformation qui permet de passer de la position des atomes à la surface de l'échantillon aux



**Figure IV-1 :** Spectre de masse obtenu sur un échantillon  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$   
 (a) : pics de Mn et de Co, (b) : pics de Pt et d'Ir.

coordonnées des impacts sur le détecteur est proche d'une projection stéréographique (voir chapitre II). À partir du rayon de courbure  $R$  de la pointe et de la distance  $L$  entre l'échantillon et le détecteur, on peut exprimer le grandissement de la projection  $G$  comme :

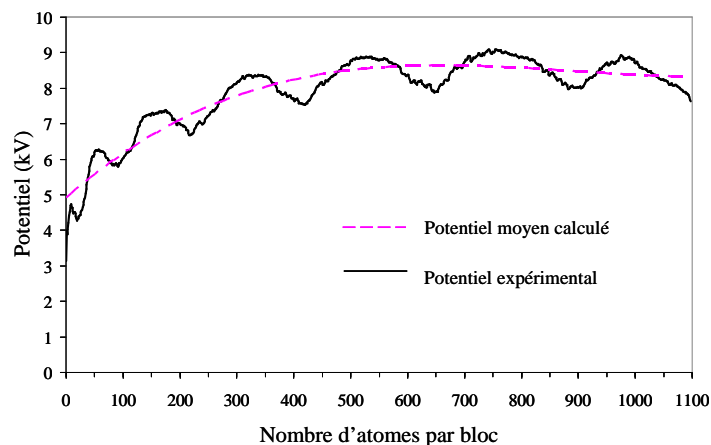
$$G \approx \frac{L}{(1+m)R} \quad (\text{IV-1})$$

Le calcul des coordonnées des atomes dans le volume analysé nécessite donc de connaître la valeur du rayon de courbure  $R$  de la pointe et son évolution au cours de l'analyse. Celui-ci dépend du champ d'évaporation  $E$  du matériau à analyser, d'un terme géométrique sans dimension  $\beta$  et de la valeur du potentiel  $V$  appliqué. Il est calculé à l'aide de la relation :

## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations

$$R = \frac{V}{E\beta} \quad (\text{IV-2})$$

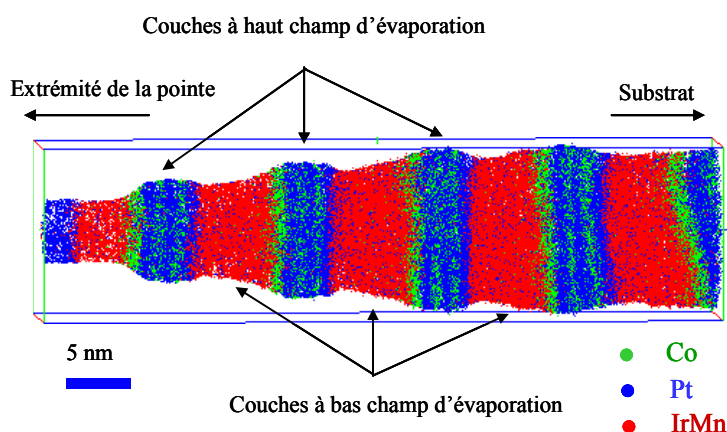
Dans les matériaux monophasés  $E\beta$  (qu'on a coutume d'écrire  $E_\beta$ ) est constant, la variation de potentiel durant l'analyse est uniquement liée à un facteur géométrique qui correspond à l'augmentation du rayon de courbure de la pointe par évaporation des atomes de surface. Dans le cas de structures multicouches composées de différents matériaux (avec différents  $E_\beta$ ), la variation du potentiel est due non seulement à la variation du rayon de courbure de la pointe (facteur géométrique), mais aussi à la variation du champ d'évaporation  $E_\beta$  des différentes couches (facteur chimique). La figure IV-2 présente un exemple de l'évolution du potentiel  $V$  en fonction de nombre cumulé d'atomes détectés lors de l'analyse d'une multicouche de type  $[(Pt/C_{0tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$ . Cette courbe de potentiel résulte de la superposition de deux contributions, une contribution due à la variation du rayon de courbure global de la pointe (courbe pointillée), et une contribution due à la variation périodique du champ d'évaporation des couches qui se manifeste par des oscillations sur la courbe de potentiel. Les maxima correspondent aux séquences  $(Pt/C_{0tCo})_3$  qui présentent le champ d'évaporation le plus élevé ( $\approx 48$  V/nm) et les minima correspondent aux séquences  $IrMn$  qui présentent un champ d'évaporation plus faible ( $\approx 30$  V/nm).



**Figure IV-2 :** Evolution du potentiel électrique appliqué à la pointe lors de l'analyse d'une multicouche  $[(Pt/C_{0tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$ .

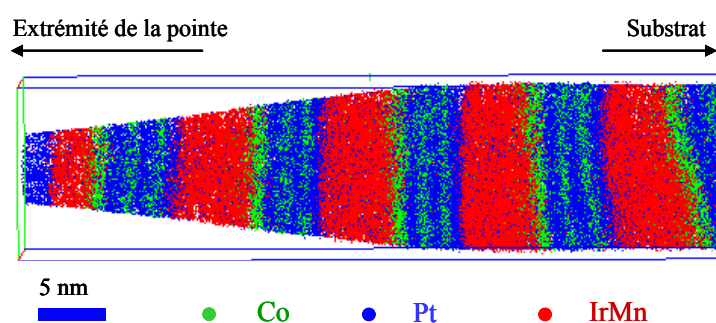
Dans ce cas, l'application de la méthode standard de reconstruction, mène pour les multicouches de type  $[(Pt/C_{0tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$  à la reconstruction 3D présentée sur la figure IV-3. On observe que les oscillations de la courbe de potentiel se traduisent par des variations du rayon de courbure et provoquent des " bourrelets " sur les bords du volume reconstruit. Ces

bouffelets correspondent à l'alternance des séquences à haut champ et à bas champ d'évaporation. De plus, cette méthode ne permet pas de calibrer correctement l'épaisseur des différentes couches.



**Figure IV-3 :** Reconstruction 3D de multicouches  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$  en appliquant la méthode standard de reconstruction.

Pour s'affranchir du facteur chimique dans le calcul du rayon de courbure, *F. Vurpillot* a proposé de retrancher de la courbe de potentiel expérimental la contribution associée aux variations de champ d'évaporation. Cette procédure consiste à ajuster la composante associée à la variation du rayon de courbure par un polynôme (courbe en pointillées). Un exemple de reconstruction 3D réalisée à partir de cet ajustement avec un  $E_\beta$  moyen est présenté sur la figure IV-4.



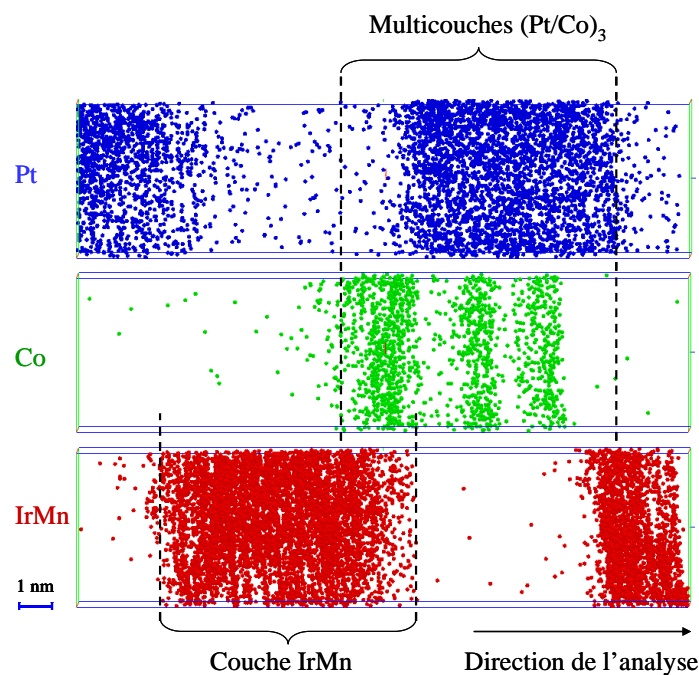
**Figure IV-4 :** Reconstruction 3D de multicouches  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$  en appliquant la méthode "Virtual voltage".

On constate que les " bouffelets " ont disparu et que l'épaisseur des couches a été correctement calibrée. Compte tenu des avantages qu'elle présente, cette méthode de reconstruction dite " virtual voltage " a été utilisée pour traiter l'ensemble des analyses des multicouches  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$ .

### IV.1.3 Profils de concentration

La figure IV-5 montre un volume d'analyse ( $5 \times 5 \times 20 \text{ nm}^3$ ) correspondant à une seule séquence de l'échantillon  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ . Les différentes couches de  $Pt$ ,  $Co$  et  $IrMn$  sont observées, et les trois couches de  $Co$  sont clairement distinguées. Cette reconstruction permet déjà d'observer :

- Une interdiffusion entre les atomes de  $Co$ , d' $Ir$  et de  $Mn$  à l'interface  $Co/IrMn$ .
- Un mélange  $Pt-Co$  dans les couches de  $Co$ .
- Une interdiffusion à l'interface  $IrMn/Pt$ .

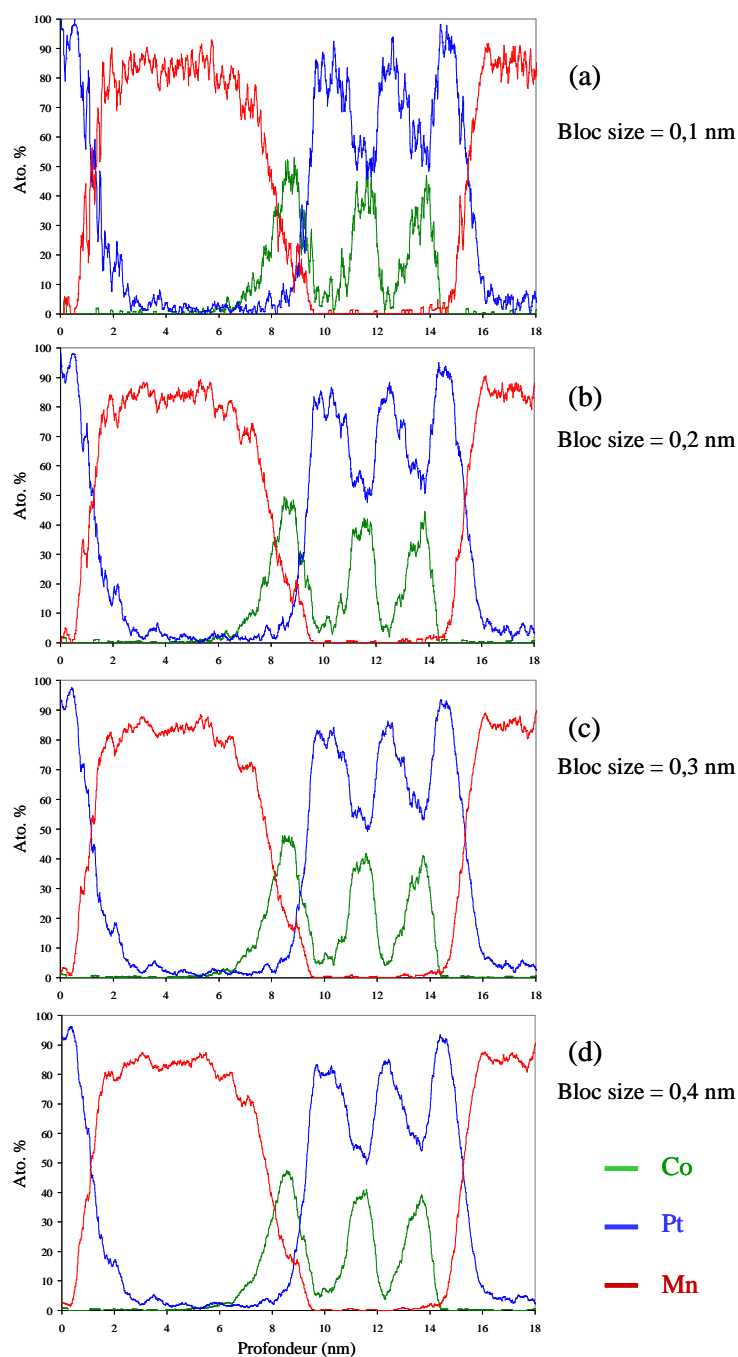


**Figure IV-5** : Reconstruction 3D d'une séquence de l'échantillon  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ .

L'identification chimique des atomes détectés dans un volume d'analyse permet également d'effectuer des mesures de composition locales qui peuvent être représentées sous la forme de profils de concentration. Un profil de concentration s'obtient en balayant selon une direction donnée le volume d'analyse avec une boîte numérique (volume d'échantillonnage) de largeur ajustable. La concentration des espèces est calculée à partir des atomes contenus dans le volume d'échantillonnage en des points déterminés par un incrément  $\Delta z$ . On peut ainsi déterminer la composition de chaque couche et caractériser la nature chimique des interfaces.

La figure IV-6 montre les profils de concentration de  $Pt$ ,  $Co$  et  $Mn$  de l'échantillon  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$  établis avec un même incrément  $\Delta z$  mais différentes largeurs du vo-

lume (ou boîte) d'échantillonnage (" bloc size "). On observe une diminution des fluctuations dans les profils lorsqu'on augmente la largeur de la boîte.



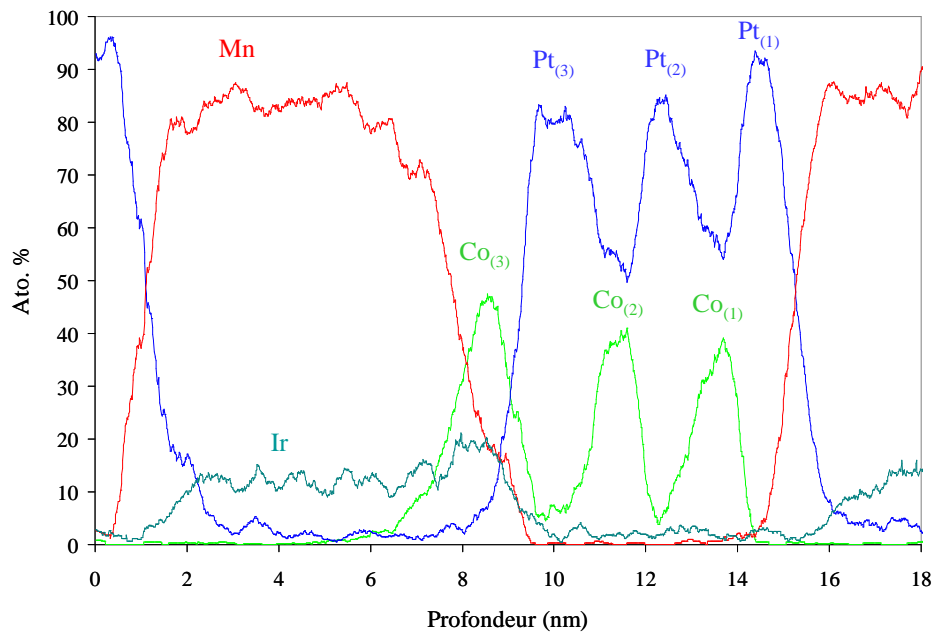
**Figure IV-6 :** Profils de concentration des atomes de Pt, Co et Mn de l'échantillon  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$  utilisant différentes largeurs de boîtes d'échantillonnage "bloc size". "bloc size" = (a) 0,1 nm, (b) 0,2 nm, (c) 0,3 nm et (d) 0,4 nm, pour un incrément  $\Delta z = 0,01$  nm.



## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations

La figure IV-7 montre les profils de concentration correspondant au volume reconstruit à la figure IV-5. Ces profils ont été réalisés avec une boîte de 0,4 nm de largeur. Ils révèlent clairement les différentes couches. L'empilement  $(Pt/Co)_3$  se caractérise par une alternance de pics de  $Co$  et de  $Pt$ . Les maxima des pics de  $Pt$  correspondent aux minima des pics de  $Co$  et réciproquement. De plus on peut constater que :

- Les couches de  $Co$  ne sont pas pures mais constituées d'un mélange  $Co-Pt$ .
- Le pic  $Co_{(3)}$  est plus large et d'une intensité plus élevée que les pics  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ .
- $Mn$  et  $Ir$  sont présents dans la couche  $Co_{(3)}$ .



**Figure IV-7** : Profils de concentration d'une séquence de l'échantillon  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ .

### IV.1.4 Interprétations

Afin d'interpréter au mieux les résultats obtenus et d'identifier les biais éventuels inhérents à la sonde atomique tomographique, les observations expérimentales ont été confrontées à des résultats numériques obtenus d'une part par simulation et d'autre part par un modèle de convolution qui a permis d'extraire le profil réel (ou le plus vraisemblable) des couches de  $Co$ .

#### IV.1.4.1 Artefacts inhérents à la sonde atomique

L'interprétation des résultats obtenus en sonde atomique nécessite la compréhension et la modélisation des artefacts introduits par la technique. Parmi ces artefacts, on peut trouver les phénomènes de grandissement local appelé " effet de loupe ", d'évaporation et de rétention préférentielle. Ceux-ci sont observés lorsque l'échantillon est constitué d'éléments ou de phases présentant des champs d'évaporation différents.

##### IV.1.4.1.1 Effet de grandissement local ou " effet de loupe "

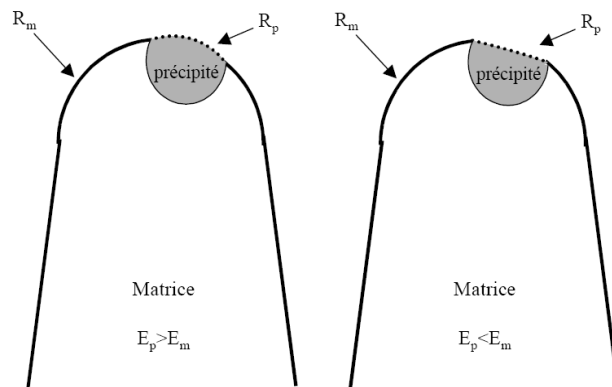
Lors de l'analyse en sonde atomique de matériaux hétérogènes constitués de phases de compositions chimiques différentes, la différence de champ d'évaporation associé à chaque phase provoque une variation du taux d'évaporation des atomes de surface entraînant ainsi une modification du rayon de courbure global de la pointe et l'apparition de rayons de courbure locaux. La figure IV-8 représente un exemple d'apparition de rayons de courbure locaux dans le cas de précipités dispersés dans une matrice. Lorsque le précipité présente un champ d'évaporation plus élevé que celui de la matrice ( $E_p > E_m$ ), l'émergence du précipité à la surface de la pointe mène à l'apparition d'une protubérance de rayon de courbure plus petit que celui de la matrice ( $R_p < R_m$ ). Au contraire, lorsque le précipité présente un champ d'évaporation plus faible que celui de la matrice ( $E_p < E_m$ ), l'émergence du précipité à la surface de la pointe mène à l'apparition d'un méplat de rayon de courbure plus grand que celui de la matrice ( $R_p > R_m$ ). Le grandissement étant dépendant du rayon de courbure, il va apparaître une différence de grandissement entre la phase à haut champ et la phase à bas champ ( $G_p \neq G_m$ ) qui affecte la morphologie des précipités et peut induire un mélange artificiel des espèces chimiques biaisant ainsi les mesures de compositions.

##### IV.1.4.1.2 Evaporation et rétention préférentielle

Dans un alliage composé d'espèces chimiques présentant des champs d'évaporation différents, on peut observer les phénomènes d'évaporation et de rétention préférentielle.

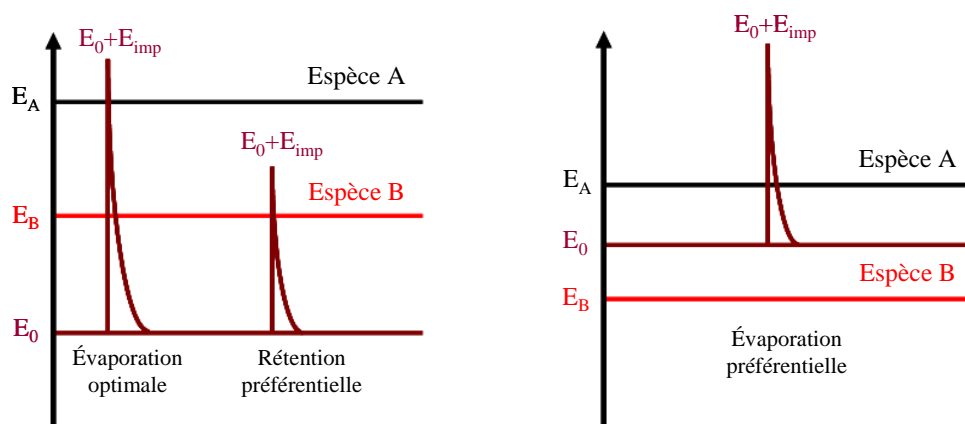
Considérons un alliage composé d'une espèce **A** et d'une espèce **B** présentant des champs d'évaporation différents  $E_A$  et  $E_B$ . Sachant que le potentiel continu  $V_0$  génère un champ électrique  $E_0$ , l'évaporation optimale est réalisée lorsque  $E_0$  est inférieur à  $E_A$  et  $E_B$  et que le champ électrique résultant de l'impulsion  $E_0 + E_{imp}$  est supérieur à  $E_A$  et  $E_B$  (Figure IV-9). Dans le cas où  $E_B < E_0 + E_{imp} < E_A$ , on assiste à l'évaporation des atomes de l'espèce **B** tandis que les atomes de l'espèce **A** ne sont pas évaporés. On appelle ce phénomène la rétention préférentielle. Si, maintenant, le champ  $E_0$  est supérieur à  $E_B$ , on assiste à une évaporation

## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations



**Figure IV-8 :** Représentation schématique de l'apparition de rayons de courbure locaux engendrés par la présence d'une phase à haut champ d'évaporation ( $E_p > E_m$ ) et d'une phase à bas champ d'évaporation ( $E_p < E_m$ ).

continue des atomes de l'espèce **B** qui ne sont donc pas détectés. Ce dernier phénomène est appelé évaporation préférentielle.



**Figure IV-9 :** Diagrammes représentant les cas de l'évaporation optimale, de la rétention préférentielle et de l'évaporation préférentielle.

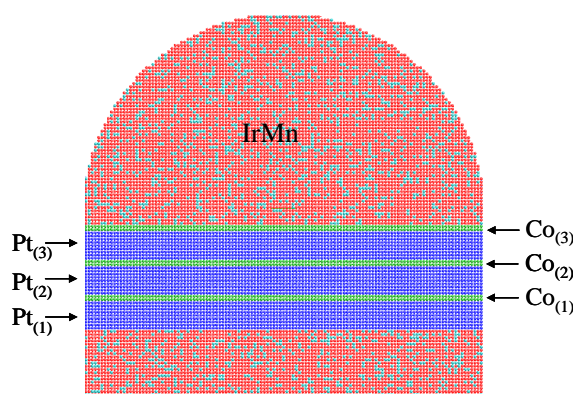
Les multicouches qui font l'objet de notre étude sont constituées d'éléments dont les champs d'évaporation sont très différents (tableau IV-1) [Mil 96]. Les artefacts mentionnés ci-dessus ont donc une forte probabilité d'apparaître dans nos analyses. C'est pourquoi, afin d'identifier leur influence sur nos résultats expérimentaux, des simulations numériques ont été effectuées par M. Gruber (Thèse de Doctorat en cours) de l'Equipe de Recherche en Instrumentation Scientifique (ERIS) du GPM. Les résultats obtenus sont présentés dans le paragraphe suivant.

**Tableau IV-1 : Valeurs des champs d'évaporation**

Elément	Champ d'évaporation V/nm
Pt	48
Co	37
Ir	53
Mn	30

#### IV.1.4.2 Simulation de l'évaporation de multicouches $(Pt/Co)_3/IrMn$ : effet de loupe

Des simulations de trajectoires des ions lors de l'analyse en sonde atomique ont été effectuées sur la base des travaux de *F. Vurpillot* [Vur 99, Vur 01]. Ces simulations, consistent à construire une pointe " numérique ", à simuler l'évaporation des atomes, puis à reconstruire en 3D le volume évaporé. Ceci permet d'étudier l'évolution de la morphologie de la pointe et de la corrélérer avec la reconstruction 3D. Dans notre cas, la pointe considérée est constituée d'une seule séquence  $IrMn/(Pt/Co)_3$ . La première simulation a été réalisée avec des couches idéales (sans interdiffusion aux interfaces). Les couches de *Co* et de *Pt* sont respectivement d'épaisseurs 0,4 et 2 nm. Les atomes de *Co* sont distribués sur deux plans atomiques avec une concentration de 100%, et les atomes de *Pt* sont distribués sur neuf plans atomiques avec une concentration de 100%, figure IV-10. Dans le modèle utilisé, la pointe est considérée hémisphérique, et d'angle de cône nul.

**Figure IV-10 : Pointe simulée constituée de couches pures de *Pt* et *Co*.**

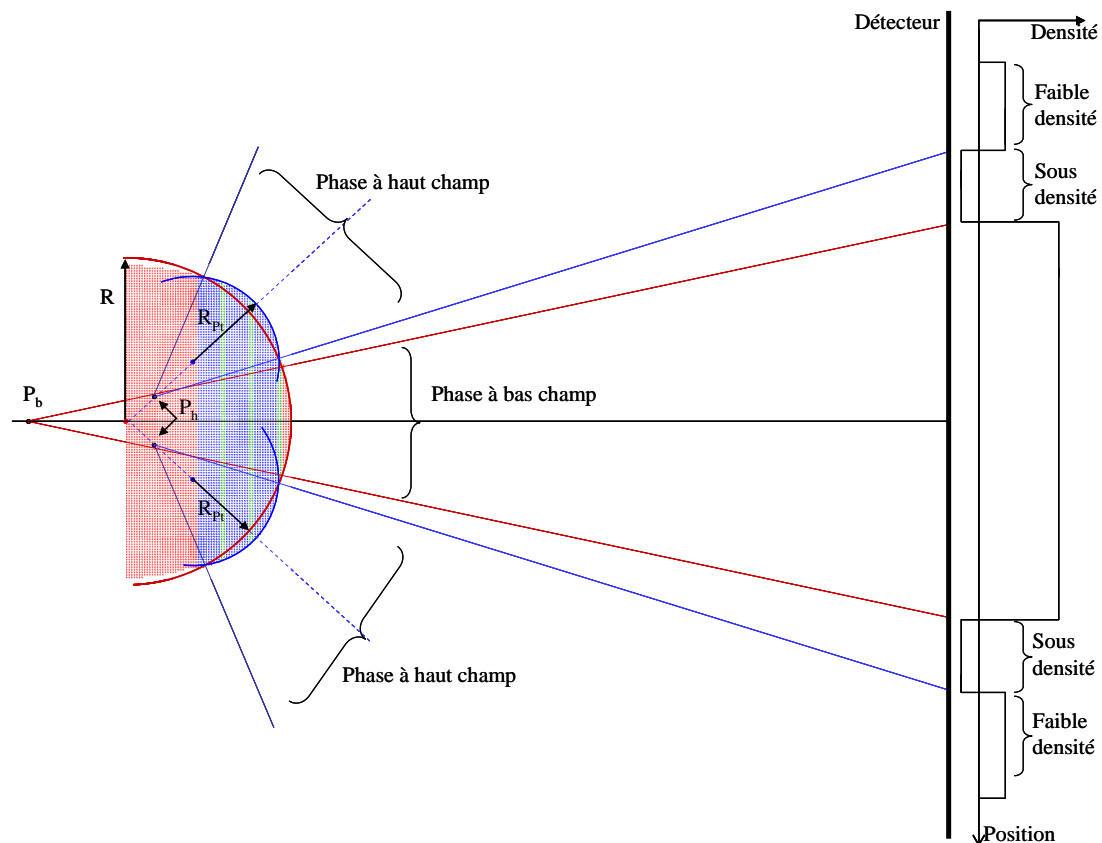
Les champs d'évaporation utilisés sont ceux du tableau IV-1. La couche *IrMn* étant constituée d'un alliage  $Ir_{20}Mn_{80}$ , un champ d'évaporation moyen a été utilisé. Il est donné par la relation :

## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations

$$E_{IrMn} = (0,2 \times 53) + (0,8 \times 30) = 34,6V.nm^{-1} \quad (IV-3)$$

### IV.1.4.2.1 Evaporation d'une couche à bas champ déposée sur une couche à haut champ

La figure IV-11 montre la morphologie de la pointe après évaporation d'un certain nombre d'atomes ainsi que les trajectoires ioniques.



**Figure IV-11 :** Représentation des trajectoires ioniques lors de l'apparition de rayons de courbure locaux dans le cas de l'évaporation d'une couche à bas champ déposée sur une couche à haut champ et variation de la densité d'atomes associée.

On peut constater que la pointe qui avait initialement un rayon de courbure homogène, présente après évaporation deux rayons de courbure différents. La bicouche  $Co_{(3)}/IrMn$  (bas champ d'évaporation) présente un rayon de courbure  $R$  et l'empilement  $Pt_{(1)}/Co_{(1)}/Pt_{(2)}/Co_{(2)}/Pt_{(3)}$  (haut champ d'évaporation) présente un rayon de courbure  $R_{Pt}$  plus petit. L'apparition de ces rayons de courbure locaux modifie la trajectoire des ions évaporés et induit une différence de grandissement (relation (IV-1)). Cela induit lors de la reconstruction

du volume analysé, des variations de densité volumique. En effet, comme le montre la figure IV-11, la densité surfacique d'atomes détectés sur le détecteur n'est pas homogène. Ainsi à l'interface bas-champ/haut-champ, le nombre d'atomes détectés est moins important, ce qui se traduit dans la reconstruction 3D par une diminution de la densité volumique. Il y a également une forte différence entre la densité d'atomes détectés de la couche à bas champ et celle de la couche à haut champ [Vur 00].

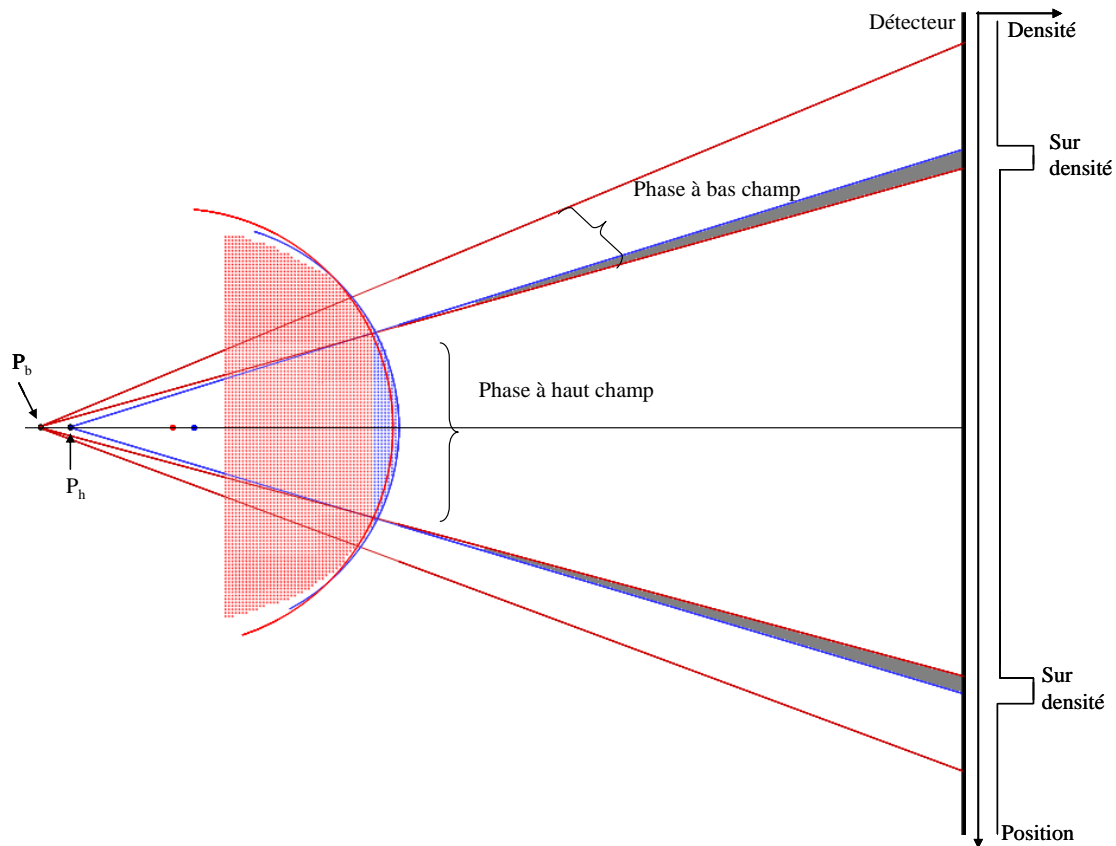
#### IV.1.4.2.2 Evaporation d'une couche à haut champ déposée sur une couche à bas champ

La figure IV-12 montre la morphologie de la pointe lors de l'évaporation d'une couche à haut champ d'évaporation (*Pt*) déposée sur une couche à bas champ (*IrMn*). Là aussi, la différence des champs d'évaporation associés aux deux couches, provoque l'apparition de deux rayons de courbure. Il y a en effet augmentation locale du rayon de courbure de la phase à bas champ (*IrMn*). Les atomes de *Pt* détectés peuvent être considérés comme issus du point de projection  $P_h$ , alors que les atomes d'*IrMn* sont issus du point de projection  $P_b$ . Dans ce cas, un recouvrement des trajectoires ioniques à l'interface entre les deux phases, est attendu. Ceci produit un mélange artificiel des atomes situés à l'interface associé à une surdensité.

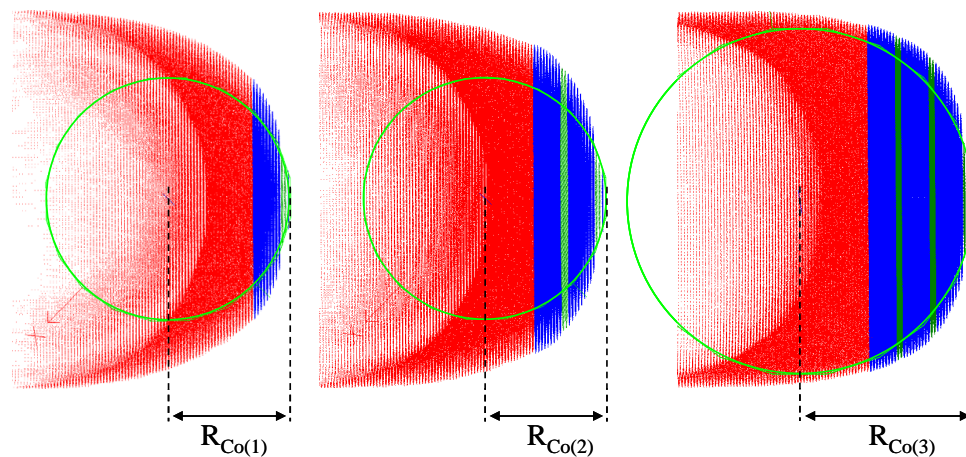
#### IV.1.4.2.3 Evaporation des couches de *Co*

Dans l'empilement des multicouches  $Pt_{(1)}/Co_{(1)}/Pt_{(2)}/Co_{(2)}/Pt_{(3)}/Co_{(3)}/IrMn$ , la couche  $Co_{(3)}$  est comprise entre une couche à bas champ d'évaporation (*IrMn*) et une couche à haut champ d'évaporation  $Pt_{(3)}$  alors que les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  sont comprises entre deux couches à haut champ d'évaporation (*Pt*). Il en résulte donc que les conditions d'évaporation des couches de *Co* sont différentes. Lors de l'évaporation, le passage de la couche *IrMn* à la couche  $Co_{(3)}$  n'entraîne qu'une modification minimale du champ d'évaporation,  $E_{IrMn}$  et  $E_{Co}$  étant très proches. Les atomes de la couche  $Co_{(3)}$  sont donc évaporés dans un environnement à bas champ. Le passage de  $Co_{(3)}/IrMn$  à la couche  $Pt_{(3)}$  est associé à une forte augmentation du champ d'évaporation qui augmente de 37 à 48  $V.nm^{-1}$ . Ainsi, compte tenu de l'épaisseur très faible des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  (0,4 nm) par rapport à l'épaisseur des couches de *Pt* (2 nm), on peut supposer que les atomes de *Co* de ces deux couches sont évaporés dans un environnement à haut champ. Ces hypothèses sont confirmées par les résultats de simulation. La figure IV-13 présente l'évolution de la morphologie de la pointe durant l'évaporation.

## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations



**Figure IV-12 :** Représentation des trajectoires ioniques lors de l'apparition de rayons de courbure locaux dans le cas de l'évaporation d'une couche à haut champ déposée sur une couche à bas champ et variation de la densité d'atomes associée.



**Figure IV-13 :** Evolution de la morphologie de la pointe durant l'évaporation et rayons de courbure locaux des couches de Co.

On constate que le rayon de courbure local de la couche  $Co_{(3)}$  est plus grand que le rayon de courbure des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . Par conséquent, selon la relation (IV-1), le grandissement de la couche  $Co_{(3)}$  est plus petit que le grandissement des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . La surface d'échantillon analysée  $S_a$  (donnée par la relation (IV-4), où  $S_d$  est la surface du détecteur et  $G$  le grandissement) est donc plus grande pour la couche  $Co_{(3)}$  que pour les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ .

$$S_a = \frac{S_d}{G^2} \quad (\text{IV-4})$$

Le nombre d'atomes collectés est donc plus élevé pour la couche  $Co_{(3)}$  que pour les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . Après reconstruction, la couche  $Co_{(3)}$  apparaîtra donc plus épaisse que les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . On peut alors montrer que l'épaisseur  $t_{Co_{(3)}}$  peut s'exprimer en fonction de  $t_{Co_{(2)}}$  par la relation (IV-5) :

$$t_{Co_{(3)}} = \left[ \frac{R_{Co_{(3)}}}{R_{Co_{(2)}}} \right]^2 \cdot t_{Co_{(2)}} = f \cdot t_{Co_{(2)}} \quad (\text{IV-5})$$

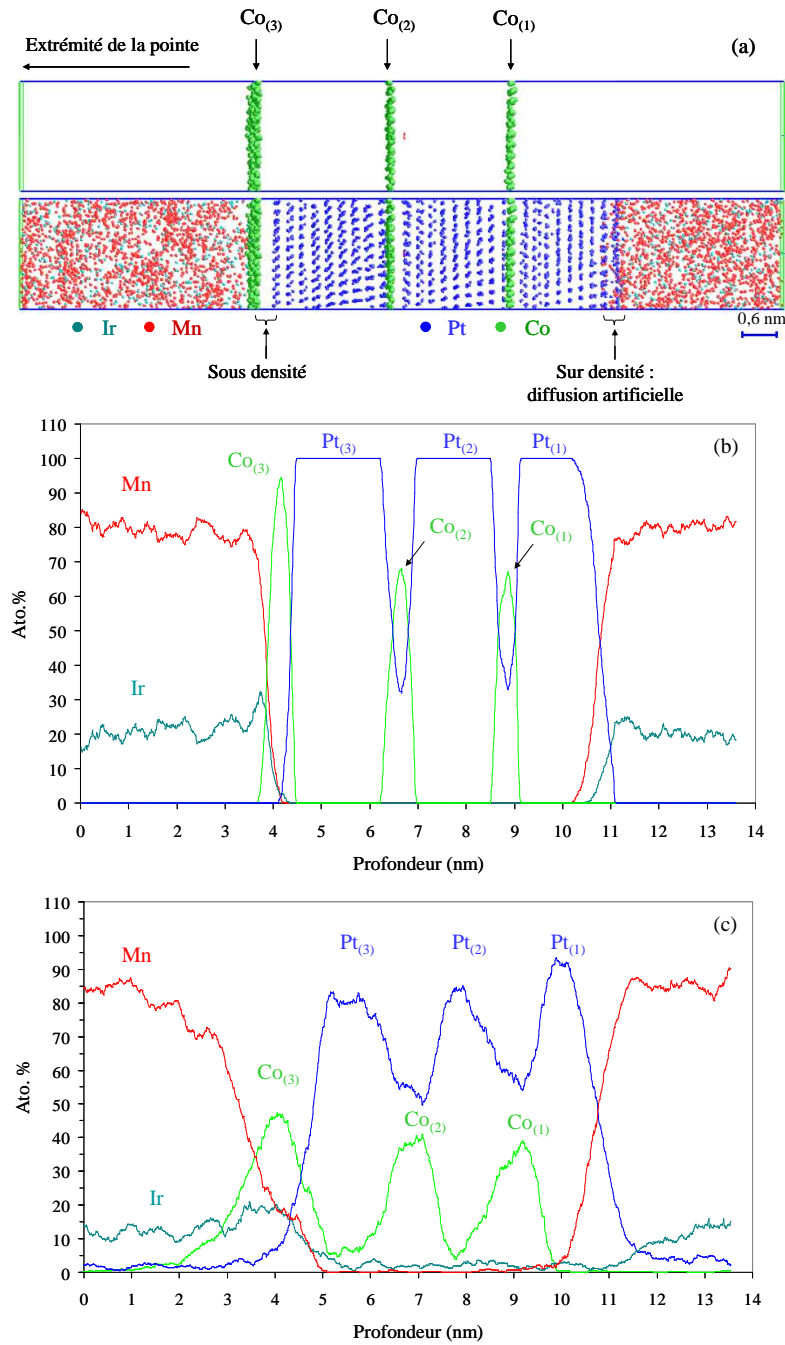
où  $f$  est appelé facteur d'amplification. Les mesures de rayons de courbure effectuées en simulation nous donnent  $f = 1,68$  pour  $t_{Co} = 0,4$  nm et  $f = 1,2$  pour  $t_{Co} = 0,6$  nm.

#### IV.1.4.2.4 Reconstruction 3D et profils de concentration

La figure IV-14(a) montre la reconstruction 3D obtenue après simulation de l'évaporation des atomes de  $Co$ ,  $Pt$ ,  $Ir$  et  $Mn$  d'une séquence de la multicouche  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ . Il est très clairement observé que les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  évaporées à haut champ présentent un aspect différent de celui de la couche  $Co_{(3)}$  évaporée à bas champ. En effet celle-ci apparaît plus épaisse. On peut également observer, une zone de sous-densité située à l'interface  $Pt_{(3)}/Co_{(3)}$  et une zone de surdensité située à l'interface  $IrMn/Pt_{(1)}$ . A cette interface les atomes de  $Pt$ ,  $Ir$  et  $Mn$  apparaissent mélangés.



## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations



**Figure IV-14 :** (a) Reconstruction 3D simulée des atomes de Co, Pt, Ir et Mn d'une séquence de la multicouche  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ , (b) Profils de concentration correspondants, (c) Profils de concentration expérimentaux.

Les profils de concentrations correspondants, réalisés avec une boîte d'échantillonnage de 0,4 nm d'épaisseur, sont présentés sur la figure IV-14(b). On observe que le pic de  $Co_{(3)}$  est

plus grand que ceux de  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . De plus, ce profil montre une zone de mélange entre les couches de  $Co$  et de  $Pt$ , contrairement à l'hypothèse initiale de couches idéales sans interdiffusion (paragraphe IV.1.4.2). Il en résulte donc que la représentation d'un mélange  $Co-Pt$  (de concentration voisine de  $Co_{70}Pt_{30}$ ) dans le profil de concentration traduit des interfaces non-diffuses. Il s'agit là d'un artefact lié à la sonde dont il faut tenir compte dans l'analyse des profils de concentration. Bien que l'on observe un léger gradient de concentration aux interfaces, les couches de  $Pt$  restent pures alors que dans le profil expérimental leur concentration n'excède pas 95%. De même, l'élargissement des couches de  $Co$  est beaucoup plus important dans le profil expérimental, figure IV-7, que dans le profil simulé. Cela montre que les échantillons ne sont pas constitués de couches de  $Co$  et  $Pt$  pures, mais qu'il y a interdiffusion entre les couches.

#### IV.1.4.3 Modélisation analytique du profil de concentration des couches de $Co$

Parallèlement au travail de simulation de l'évaporation des couches, nous avons proposé un modèle analytique basé sur le principe des produits de convolution. Celui-ci a été utilisé pour extraire le profil de concentration réel des couches de  $Co$  à partir du profil expérimental obtenu en sonde atomique [Lar 09]. Encore une fois, il s'agit de prendre en compte les différents biais introduits par la sonde atomique, sources d'incertitudes sur la mesure, afin d'obtenir le résultat le plus représentatif du matériau.

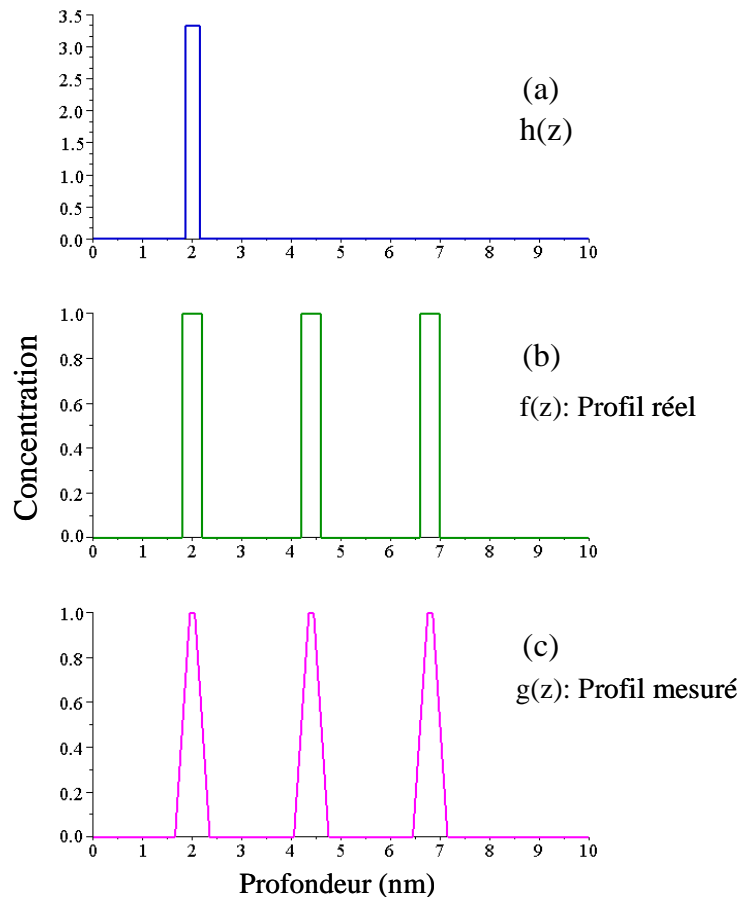
Comme il a été mentionné dans le paragraphe IV.1.3, un profil de concentration s'obtient en balayant selon une direction donnée le volume de mesure avec une boîte d'échantillonnage de largeur ajustable. Mathématiquement, le profil obtenu peut donc être modélisé par un produit de convolution. Considérons, par exemple, des couches de  $Co$  idéales d'épaisseur 0,4 nm où les atomes de  $Co$  sont distribués sur deux plans atomiques. Le profil de concentration de ces couches (profil réel) est représenté par une fonction créneau  $\mathbf{f}(\mathbf{z})$  (figure IV-15). Le profil de concentration obtenu après échantillonnage (profil mesuré) peut être considéré comme le résultat  $\mathbf{g}(\mathbf{z})$  du produit de convolution de la fonction  $\mathbf{f}(\mathbf{z})$  par la fonction créneau  $\mathbf{h}(\mathbf{z})$  qui représente la boîte d'échantillonnage.

$$g(z) = f(z) \otimes h(z) = \int h(z - z_1) \times f(z_1) \times dz_1 \quad (\text{IV-6})$$

La figure IV-15 présente les fonctions  $\mathbf{h}(\mathbf{z})$  et  $\mathbf{f}(\mathbf{z})$  ainsi que le produit de convolution  $\mathbf{g}(\mathbf{z})$ .  $\mathbf{h}(\mathbf{z})$  est une fonction créneau dont la largeur a été fixée à 0,3 nm et de surface égale à l'unité.  $\mathbf{f}(\mathbf{z})$  représente le profil réel des couches idéales de  $Co$ , constitué de trois créneaux de largeur 0,4 nm et de hauteur 1. On constate que le profil mesuré, représenté par la fonction  $\mathbf{g}(\mathbf{z})$ , présente

## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations

trois pics de hauteur égale à 1 mais de largeur à la base plus élevée que le profil réel. Cela montre que le principe même de mesure du profil de concentration est source d'incertitude et introduit une interdiffusion artificielle traduite par l'étalement des pics de concentration.



**Figure IV-15 :** (a) Fonction  $h(z)$  représentant la boîte d'échantillonnage, (b) fonction  $f(z)$  représentant le profil réel des couches de Co et (c) produit de convolution  $g(z)$  représentant le profil mesuré.

À l'incertitude liée au principe de mesure, il convient d'ajouter les incertitudes provenant des différents artefacts de la sonde. Ces incertitudes sont :

- L'incertitude liée à la désorientation du volume de mesure :

Lors de la mesure du profil de concentration à travers une interface, le volume de mesure doit être parfaitement perpendiculaire à l'interface. L'incertitude introduite ici est évaluée à  $\pm \frac{1}{2}$  plan atomique de Pt. Sachant que la distance entre deux plans atomiques de Pt est de 0,226 nm, il convient donc de prendre une fonction  $h(z)$  de largeur plus élevée  $\approx 0,5$  nm.

- L'incertitude liée à la résolution en profondeur de la sonde :

La résolution en profondeur (précision sur la position  $z$  d'un atome) de la sonde atomique est estimée dans les meilleures conditions à  $\pm \frac{1}{2}$  plan atomique. Celle-ci peut néanmoins se dégrader en fonction de l'environnement des atomes évaporés. Dans notre cas, les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  (à bas champ d'évaporation) sont comprises entre deux couches à haut champ d'évaporation ( $Pt$ ). La différence importante entre les champs d'évaporation induit une diminution de la résolution en profondeur estimée à  $\pm 1$  plan atomique. L'incertitude globale introduite ici est donc estimée à  $\pm 1,5$  plan atomique de  $Pt$ . Cette incertitude est prise en compte en introduisant un second produit de convolution avec la fonction créneau  $I(\mathbf{z})$ . Cette fonction est de largeur 0,7 nm pour les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . Elle est de largeur 0,22 nm pour la couche  $Co_{(3)}$  car dans ce cas l'incertitude liée à la différence de champ ne doit pas être prise en compte (champs d'évaporation d' $IrMn$  et de  $Co$  très proches).

– Le facteur d'amplification lié à l'effet de loupe :

Compte tenu de la différence observée de grandissement de la couche  $Co_{(3)}$  et des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ , il convient de prendre également en compte le facteur d'amplification  $f$  qui augmente l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$ .

Compte tenu de ces sources d'incertitudes, le profil de concentration des couches de  $Co$  peut donc s'exprimer par :

$$g(z) = f(z) \otimes I(z) \otimes h(z) \quad \text{pour les couches } Co_{(1)} \text{ et } Co_{(2)}$$

et

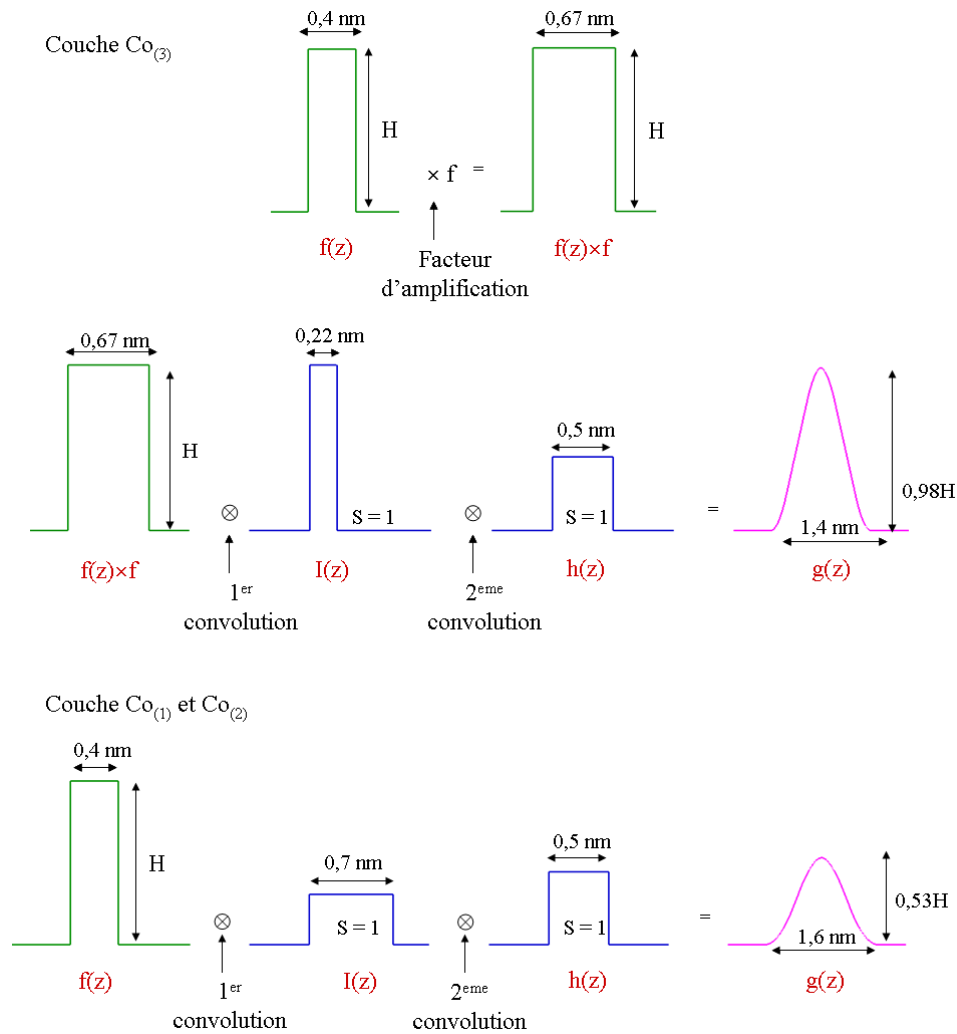
$$g(z) = (f(z) \cdot f) \otimes I(z) \otimes h(z) \quad \text{pour la couche } Co_{(3)}$$

La figure IV-16 présente le schéma de principe des produits de convolution menant au profil de concentration mesuré des couches  $Co_{(1)}$ ,  $Co_{(2)}$  et  $Co_{(3)}$ .

Il apparaît avec cette représentation très simplifiée des couches de  $Co$  (sur deux plans) que la largeur du profil de concentration de la couche  $Co_{(3)}$  est plus faible que celle des deux autres couches de  $Co$ , ce qui est contraire au profil expérimental. Il est donc nécessaire de moduler à la fois la largeur et la hauteur de la fonction  $\mathbf{f}(\mathbf{z})$  afin de déterminer la distribution la plus vraisemblable des atomes de  $Co$  au sein des différentes couches de  $Co$ .

Le profil expérimental obtenu en sonde pour l'échantillon  $(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3/IrMn$  a été ajusté en utilisant ce modèle. Pour ce faire, il a été également supposé que les couches de  $Co$  présentent intrinsèquement un profil de concentration de type Gaussien. Cet ajustement a permis d'extraire un profil  $\mathbf{f}(\mathbf{z})$  plus représentatif de la réalité. La figure IV-17(b) présente l'ajustement avec la fonction  $\mathbf{g}(\mathbf{z})$  d'un profil de  $Co$  expérimental ( $t_{Co} = 0,4$  nm). Cette fonction

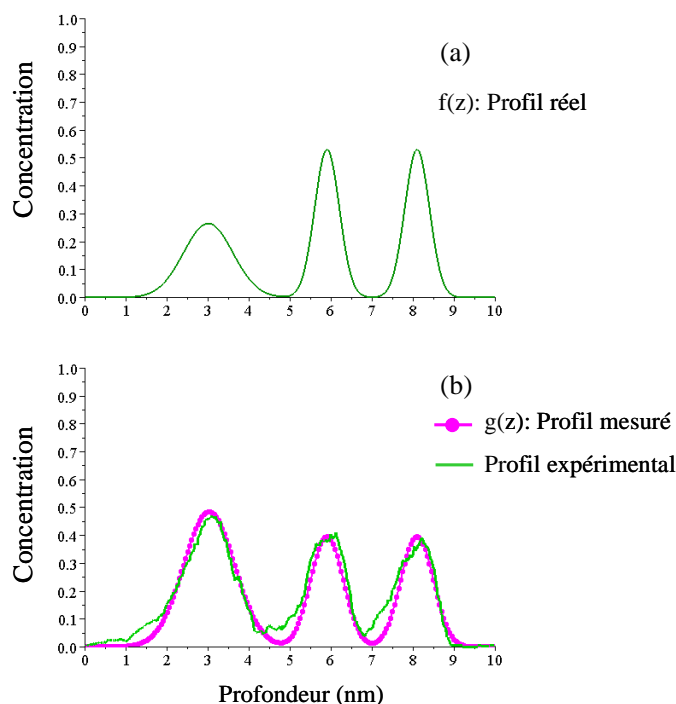
## IV.1. Analyses, reconstruction 3D, profils de concentration et interprétations



**Figure IV-16 :** Schéma de principe des produits de convolution menant au profil de concentration mesuré des couches  $Co_{(1)}$ ,  $Co_{(2)}$  et  $Co_{(3)}$ .

$g(z)$  a été obtenue avec la fonction  $f(z)$  (figure IV-17(a)) qui correspond au profil réel des couches de  $Co$ .

Le résultat obtenu montre que les trois couches de cobalt ne sont pas pures, mais constituées d'un mélange. De plus, on constate qu'elles présentent un aspect différent. En effet les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  sont constituées à cœur d'un mélange  $Pt-Co$  et présentent une largeur à mi-hauteur de 0,7 nm. La couche  $Co_{(3)}$ , moins riche en  $Co$ , est constituée d'un mélange de  $Pt$ ,  $Co$ ,  $Ir$  et  $Mn$ . Elle présente une largeur à mi-hauteur plus élevée, égale à 1,3 nm.



**Figure IV-17 :** (a) Profil  $f(z)$  des couches de  $Co$  de forme gaussienne, (b) Ajustement du profil expérimental par la fonction  $g(z)$ .

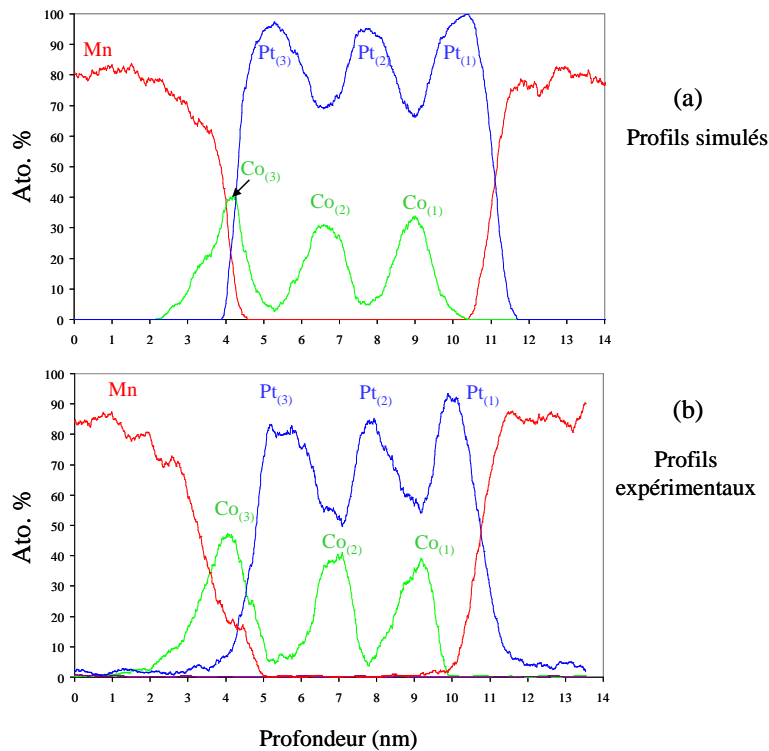
#### IV.1.4.4 Comparaison modélisation - simulation - expérience

Le profil  $f(z)$  de l'échantillon  $(Pt_{2nm}/Co_{0,4nm})_3/IrMn_{7nm}$  obtenu par le modèle analytique de convolution a été utilisé pour simuler numériquement l'évaporation et la reconstruction 3D. Les profils de concentration obtenus sont présentés sur la figure IV-18.

On constate que les profils simulés sont très similaires aux profils expérimentaux. Les couches de  $Co$  ne sont pas pures, un mélange  $Co-Pt$  apparaît au cœur des couches de  $Co$ . De plus, le pic présentant la couche  $Co_{(3)}$  est plus intense et plus large que ceux des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ .

L'interface  $IrMn/Pt$  dans le profil expérimental est abrupte et très similaire à celle du profil simulé, ce qui indique que le mélange entre les atomes de  $Pt$  et de  $Mn$  à cette interface est artificiel et dû à l'analyse. Le fait que le champ d'évaporation de  $Mn$  est inférieur à celui de  $Pt$  provoque une évaporation simultanée des atomes de  $Mn$  avec les atomes de  $Pt$ , et par conséquent, un léger mélange à l'interface  $IrMn/Pt$ . C'est l'effet de loupe qui est observé ici. La seule différence notable entre l'expérience et la simulation apparaît au niveau de la couche  $Co_{(3)}$  où les pentes des profils de  $Mn$  et  $Pt$  sont nettement moins abruptes dans l'expérience que dans la simulation.

## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$



**Figure IV-18 :** (a) Profils de concentration obtenus par simulation (couches de Co de forme gaussienne) à partir du modèle de convolution (b) Profils expérimentaux.

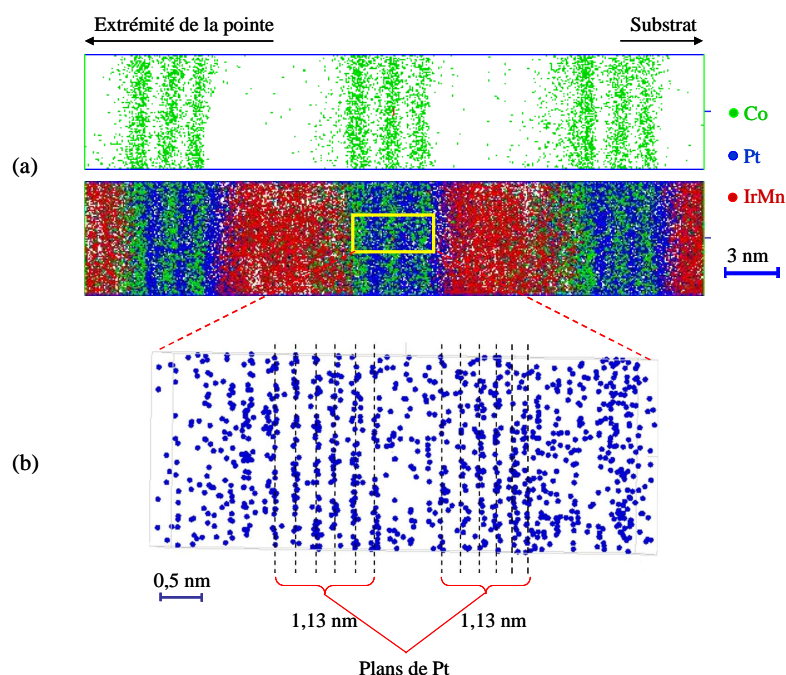
L'ensemble des résultats obtenus par simulation numérique ou par modélisation analytique montre que malgré les artefacts de mesure introduits par la sonde atomique dans les profils de concentration, ceux-ci restent représentatifs de nos échantillons permettant ainsi de les caractériser de façon précise. En effet, les mélanges atomiques observés aux interfaces  $Co_{(3)}/IrMn$  et  $IrMn/Pt_{(1)}$  ont pu être quantifiés, montrant ainsi que l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  est diffuse alors que l'interface  $IrMn/Pt_{(1)}$  est abrupte.

## IV.2 Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$

Dans cette partie, sont présentés les résultats de la caractérisation par sonde atomique tomographique des multicouches  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  avec  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm et  $t_{Pt} = 0$  et  $0,4$  nm.

#### IV.2.1 Couches $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ et $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$

La figure IV-19(a) présente une projection 2D de la reconstruction 3D ( $7 \times 7 \times 38 \text{ nm}^3$ ) obtenue pour la multicouche  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ . Trois séquences y sont présentées. Les couches de  $Co$  sont clairement observées. On constate également que les plans de  $Pt$  (111), liés à la texture (111) des couches, sont bien résolus au centre des couches  $Pt_{(2)}$  et  $Pt_{(3)}$  mais ne sont pas observés dans la couche  $Pt_{(1)}$  en contact avec la couche  $IrMn$ . Le même type de reconstruction a été obtenu pour l'échantillon avec spacer de  $Pt$ .



**Figure IV-19 :** (a) Projection 2D de la reconstruction 3D ( $7 \times 7 \times 38 \text{ nm}^3$ ) de la multicouche  $(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn$ . (b) Plans atomiques (111) de  $Pt$ .

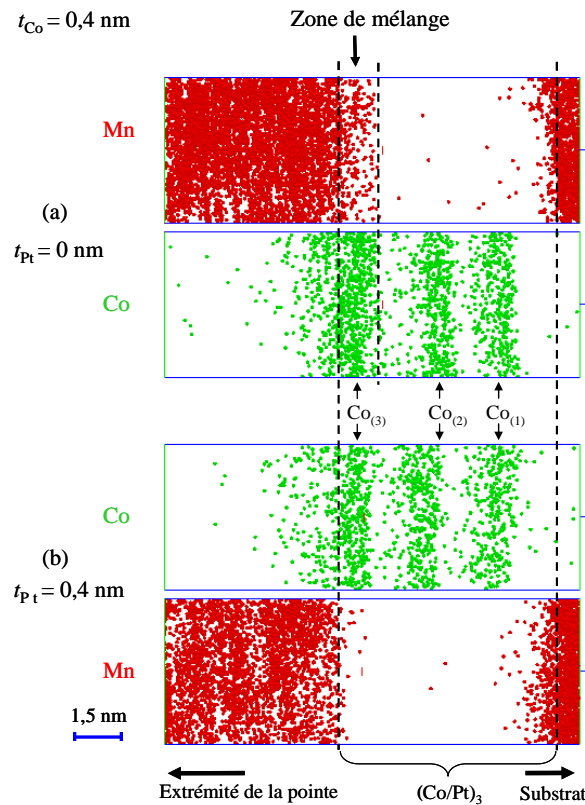
Les figures IV-20(a) et IV-20(b) montrent la distribution spatiale des atomes de  $Co$  et de  $Mn$  au sein d'une seule séquence des échantillons sans spacer et avec spacer de  $Pt$ .

La figure IV-20 met en évidence l'influence du spacer sur la structure de l'interface FM/AFM. En effet, dans l'échantillon sans spacer, on peut observer une forte diffusion des atomes de  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$  alors que dans l'échantillon avec spacer cette même diffusion semble inexistante. Le même phénomène est observé pour l' $Ir$ . Il en résulte que le spacer de  $Pt$  semble agir comme une barrière de diffusion qui empêche la diffusion des atomes d' $Ir$  et de  $Mn$  vers la couche  $Co_{(3)}$ .

Cet effet est plus clairement observé sur les profils de concentration. La figure IV-21 présente les profils de concentration de  $Pt$ ,  $Co$  et  $Mn$  pour une seule séquence dans les échan-



## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$

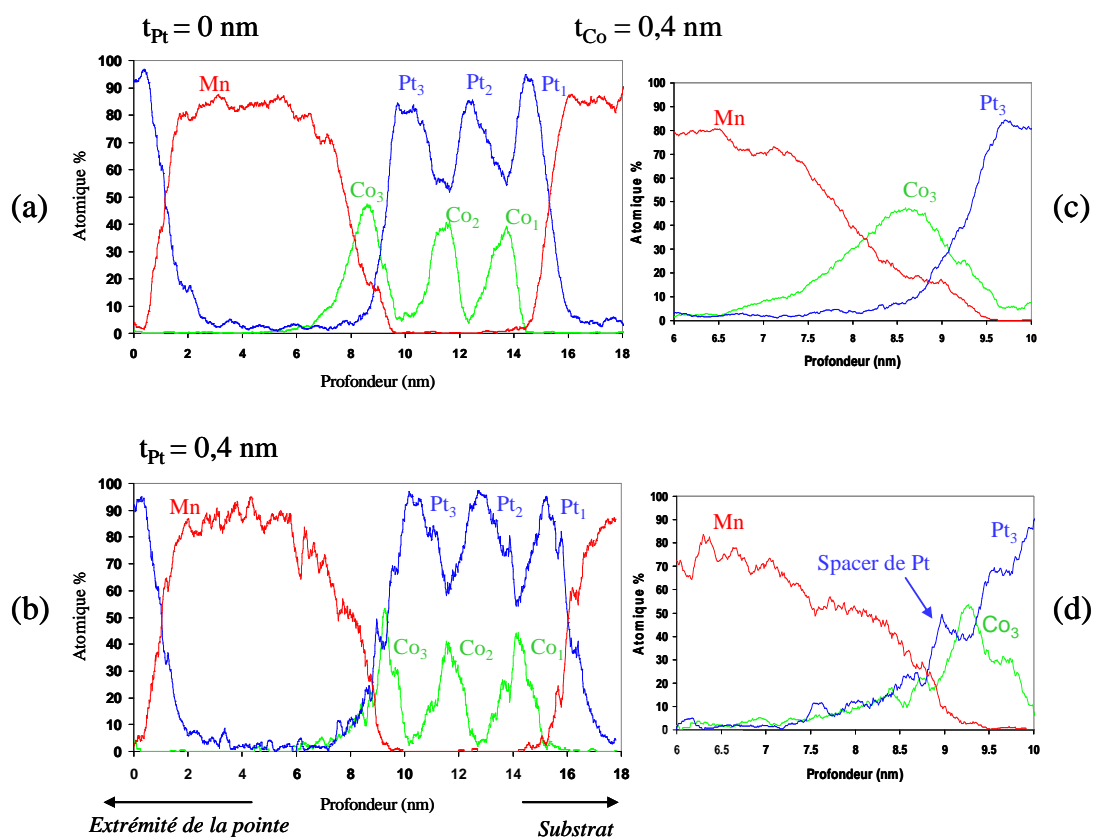


**Figure IV-20 :** (a) Distribution spatiale des atomes de  $Co$  et de  $Mn$  dans une seule séquence de l'échantillon avec  $t_{Co} = 0,4$  nm sans spacer et (b) du même échantillon avec spacer.

tillons, sans spacer (figure IV-21(a)) et avec spacer (figure IV-21(b)). Par souci de clarté, le profil d' $Ir$  n'est pas représenté. Les figures IV-21(c) et IV-21(d) présentent des agrandissements des zones correspondant à la couche  $Co_{(3)}$ .

La figure IV-21(c), montre que dans le cas de l'échantillon sans spacer de  $Pt$ , les atomes de  $Mn$  diffusent sur toute l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$ . Au centre de la couche  $Co_{(3)}$  on obtient des concentrations atomiques de 20% de  $Mn$ , 20% d' $Ir$  et 10% de  $Pt$  pour une concentration maximale de  $Co$  proche de 50%. On constate, que l'insertion du spacer de  $Pt$ , visible sur la figure IV-21(d), limite fortement la diffusion des atomes de  $Mn$  et d' $Ir$  dans la couche  $Co_{(3)}$ . Dans ce cas, la concentration de  $Mn$  au cœur de la couche  $Co_{(3)}$  est en effet pratiquement négligeable. Le spacer de  $Pt$  empêche donc la diffusion des atomes de  $Mn$  et d' $Ir$  et permet de préserver l'intégrité de la couche  $Co_{(3)}$ .

La correction des profils expérimentaux a été réalisée en utilisant le modèle analytique présenté dans la partie IV.1. Elle permet d'obtenir les profils réels des couches de  $Co$ , figure IV-22.

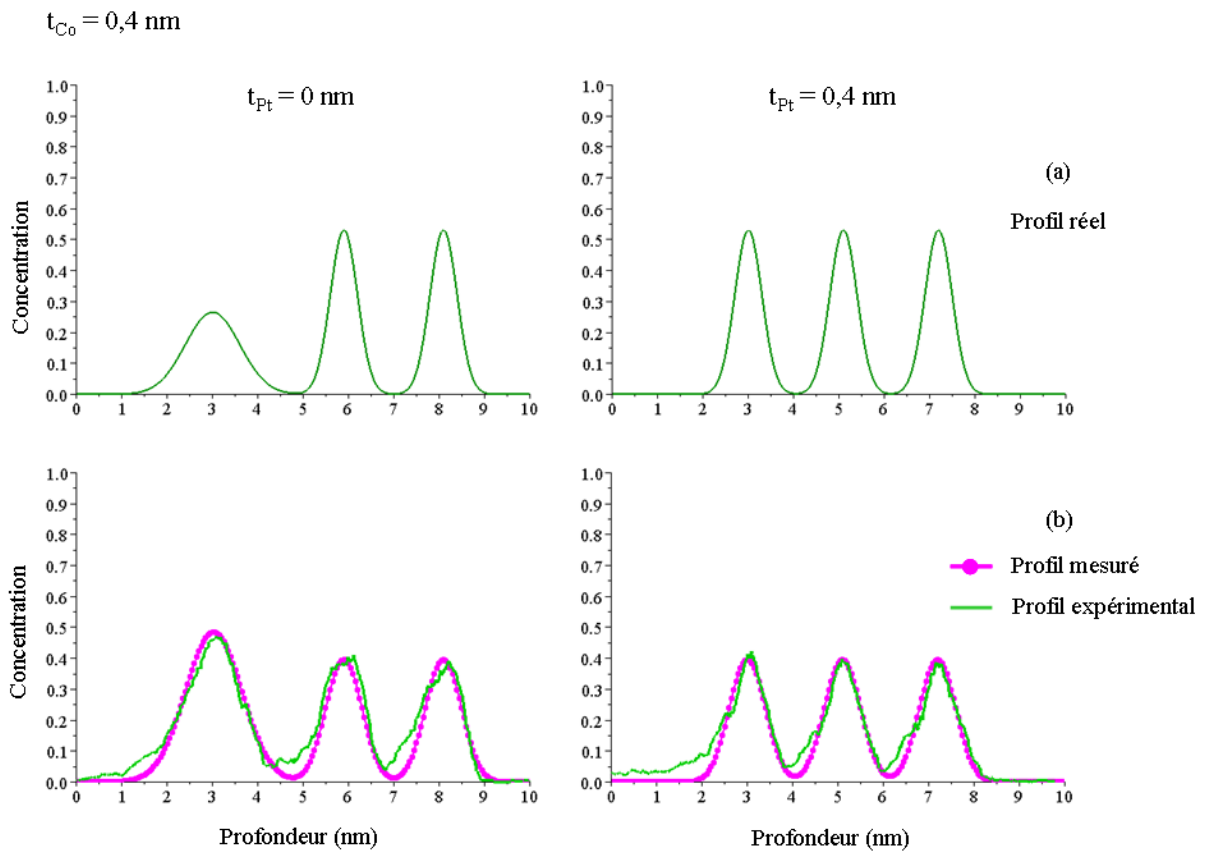


**Figure IV-21 :** (a) Profils de concentration de Co, Pt et Mn d'une seule séquence des échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm sans spacer de Pt et (b) avec spacer de Pt. (c) et (d) sont les agrandissements des zones correspondant à la couche  $Co_{(3)}$ .

Les profils réels montrent que dans le cas de l'échantillon sans spacer de Pt, la couche  $Co_{(3)}$  est différente des deux autres couches de Co. En effet la couche  $Co_{(3)}$  est plus large et moins riche en Co. Ceci est attribué à la diffusion des atomes de Mn et d'Ir observée précédemment. Dans le cas de l'échantillon avec spacer de Pt, les trois couches de Co sont identiques. Elles ont toutes trois une concentration à cœur de 50%. Ces profils montrent également que dans cette gamme d'épaisseur ( $t_{Co} = 0,4$  nm) la pulvérisation cathodique mène à la formation de couches Co-Pt et non à des couches de Co pures.

Ces résultats mettent donc en évidence le rôle de l'insertion du spacer de Pt sur la nature de l'interface FM/AFM. Le spacer agit comme une barrière de diffusion qui empêche les atomes de Mn et d'Ir de pénétrer dans la couche de Co en contact avec la couche IrMn. L'intégrité de la couche  $Co_{(3)}$  étant ainsi préservée, on peut alors s'attendre à un renforcement de l'orientation perpendiculaire de l'anisotropie à l'interface FM/AFM et donc à une augmentation du champ d'échange  $H_E$ .

## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$

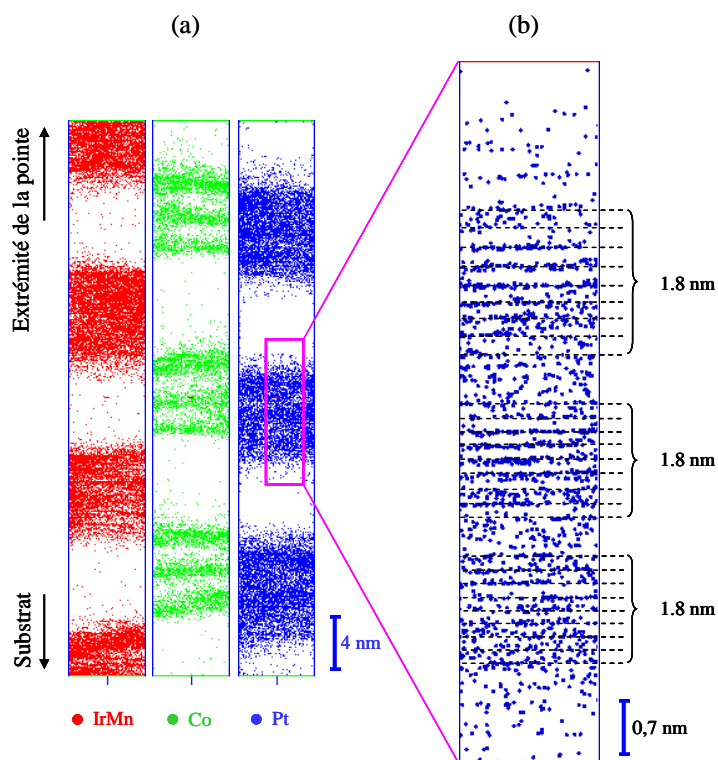


**Figure IV-22 :** (a) Profils réels (corrigés) des couches de  $Co$  pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$  avec et sans spacer de  $Pt$ . (b) Profils expérimentaux obtenus par sonde atomique et ajustements correspondants.

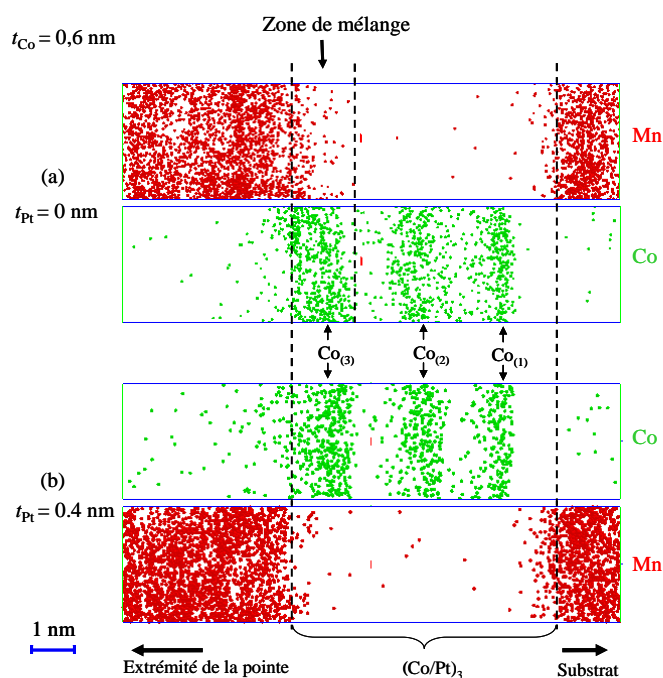
### IV.2.2 Couches $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/IrMn]_7$ et $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/Pt_{0,4nm}/IrMn]_7$

La figure IV-23 présente une projection 2D de la reconstruction 3D d'un volume ( $6 \times 6 \times 45 \text{ nm}^3$ ) obtenue sur la multicouche  $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/IrMn]_7$ . Seules trois séquences sont représentées. Les différentes couches de l'empilement sont clairement observées. Les plans atomiques (111) de  $Pt$  sont également bien résolus dans les trois couches de  $Pt$ .

La figure IV-24 montre, la distribution spatiale des atomes de  $Co$  et de  $Mn$  au sein d'une seule séquence de l'échantillon sans spacer de  $Pt$  (figure IV-24(a)) et au sein d'une séquence de l'échantillon avec spacer de  $Pt$  (figure IV-24(b)).



**Figure IV-23 :** (a) Projection 2D de la reconstruction 3D ( $6 \times 6 \times 45 \text{ nm}^3$ ) de la multicouche  $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/IrMn]_7$  et (b) plans atomiques (111) de Pt.

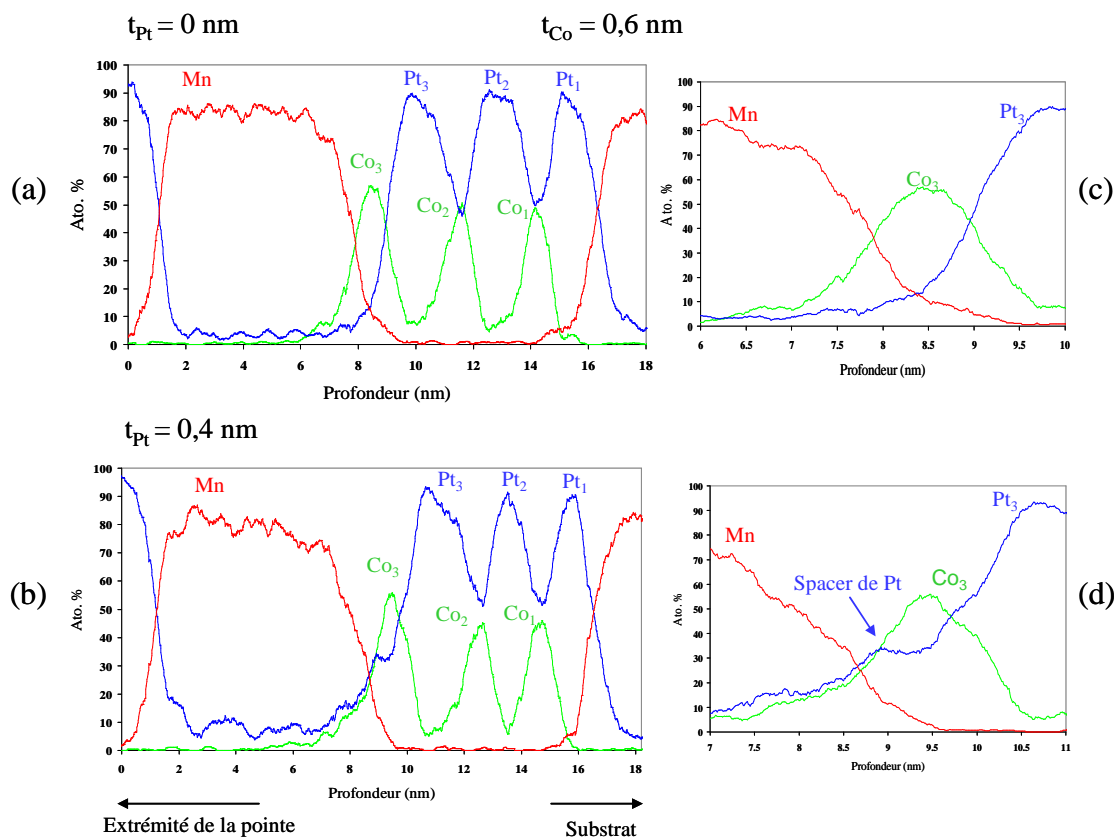


**Figure IV-24 :** (a) Distribution spatiale des atomes de Co et Mn dans une seule séquence de l'échantillon avec  $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$  sans spacer de Pt et (b) de l'échantillon avec spacer de Pt.

## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$

On constate que, dans l'échantillon sans spacer de  $Pt$ , les atomes de  $Mn$  ont diffusé sur la moitié de la couche  $Co_{(3)}$ . Par contre, dans l'échantillon avec spacer de  $Pt$ , la diffusion du  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$  semble fortement réduite. Le même phénomène est observé pour l' $Ir$ .

La figure IV-25 présente les profils de concentration des atomes de  $Pt$ ,  $Co$  et  $Mn$  d'une seule séquence pour les deux échantillons sans spacer (figure IV-25(a)) et avec spacer de  $Pt$  (figure IV-25(b)). Le profil de l' $Ir$  n'est pas représenté. Les figures IV-25(c) et IV-25(d) présentent des agrandissements des zones correspondants à la couche  $Co_{(3)}$ . De manière générale, on constate que les couches de  $Co$  sont plus riches à cœur que dans le cas où  $t_{Co} = 0,4$  nm. Ceci s'explique simplement par l'augmentation de l'épaisseur des couches de  $Co$ .

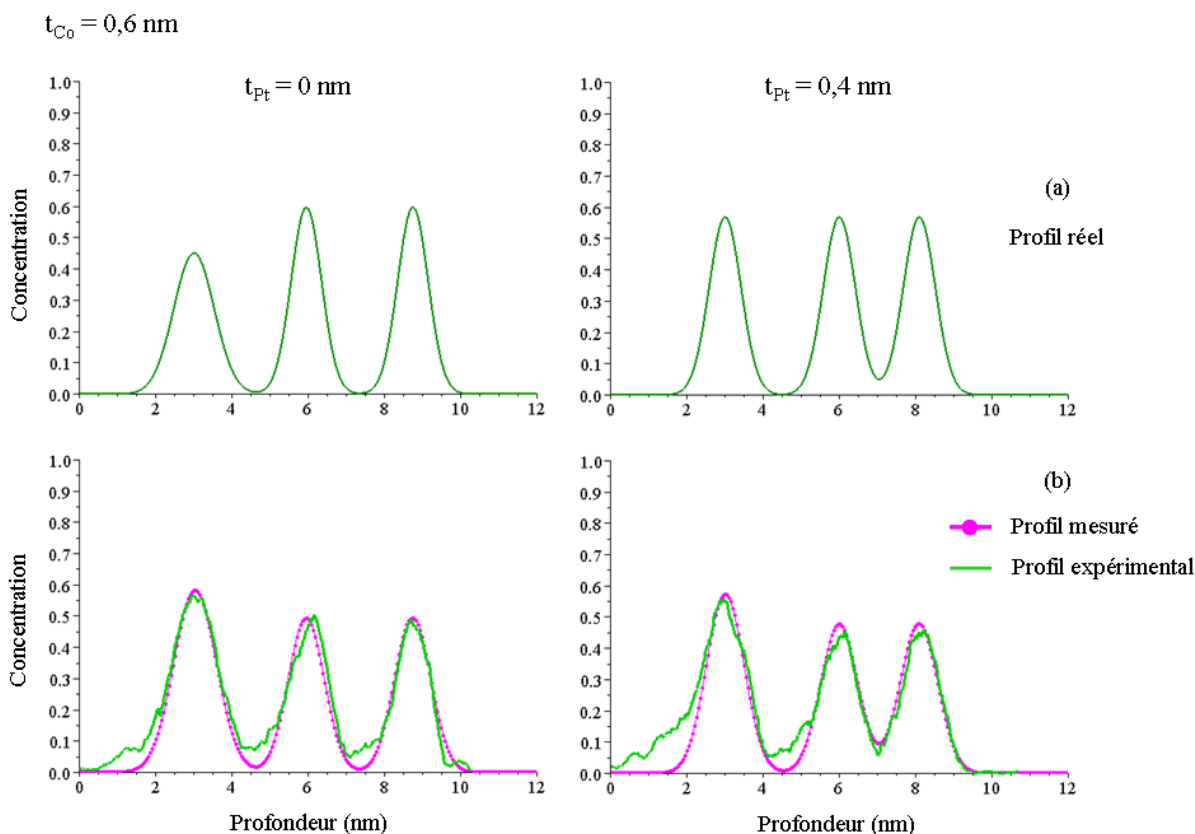


**Figure IV-25 :** (a) Profils de concentration de  $Co$ ,  $Pt$  et  $Mn$  dans une seule séquence des échantillons avec  $t_{Co} = 0,6$  nm sans spacer et (b) avec spacer de  $Pt$ . (c) et (d) sont les agrandissements des zones correspondants à la couche  $Co_{(3)}$ .

Sur la figure IV-25(c), on observe que dans l'échantillon sans spacer, les atomes de  $Mn$  ont légèrement diffusé dans la couche  $Co_{(3)}$ . Les concentrations atomiques de  $Mn$  et d' $Ir$  au centre de la couche  $Co_{(3)}$  sont proches de 10% et 15% pour une concentration maximale de  $Co$

voisine de 60%. On peut observer sur la figure IV-25(d) un petit pic correspondant au spacer de  $Pt$ . Il apparaît très clairement sur cette figure que la concentration de  $Mn$  diminue très fortement lorsque la concentration de  $Pt$  augmente. La concentration de  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$  est négligeable. Le spacer de  $Pt$  agit comme précédemment comme une barrière de diffusion empêchant la diffusion du  $Mn$  et de l' $Ir$  dans la couche  $Co_{(3)}$ .

La figure IV-26, présente les profils réels (corrigés) de  $Co$ .



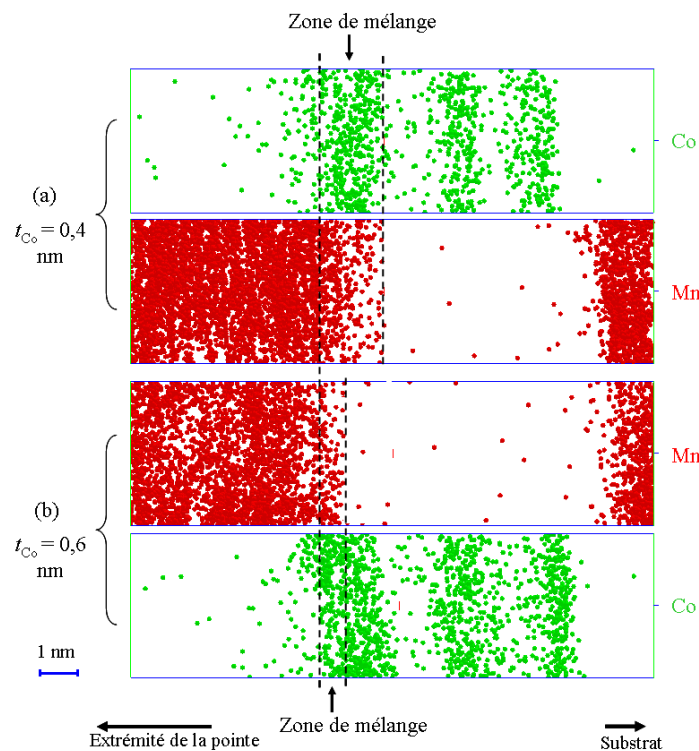
**Figure IV-26 :** (a) Profils réels (corrigés) des couches de  $Co$  pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,6 \text{ nm}$  avec et sans spacer de  $Pt$ . (b) Profils expérimentaux obtenus par sonde atomique et ajustements correspondants.

Ces résultats sont similaires à ceux obtenus pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ . La couche  $Co_{(3)}$  de l'échantillon sans spacer de  $Pt$  est mélangée avec les atomes de  $Pt$ ,  $Ir$  et  $Mn$ . Les atomes de  $Co$  de cette couche sont distribués sur un nombre de plans atomiques plus élevé que pour les couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . La concentration en  $Co$  au centre de la couche  $Co_{(3)}$  est aussi plus faible que celle des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$ . Comme pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4 \text{ nm}$ , l'insertion du spacer de  $Pt$  empêche la diffusion du  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$ . Si l'effet dû à l'insertion du spacer présente sur la structure des similitudes pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6 \text{ nm}$ , on peut néanmoins s'interroger sur les différences de structure qui

## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{t_{Co}})_3/Pt_{t_{Pt}}/IrMn$

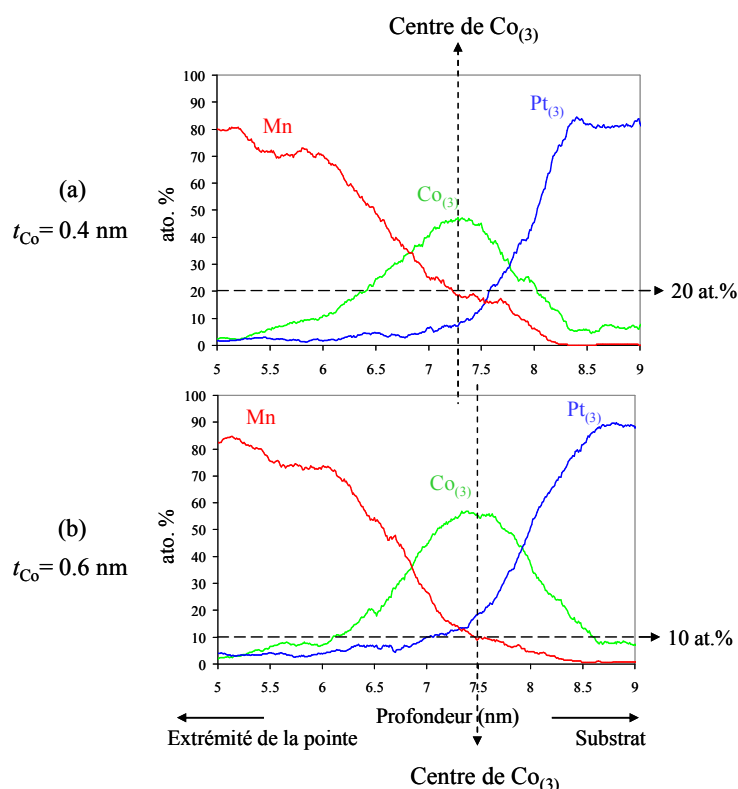
peuvent exister entre les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm ne comportant pas de spacer de  $Pt$ .

La figure IV-27 compare la distribution spatiale des atomes de  $Co$  et de  $Mn$  dans les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm sans spacer de  $Pt$  ( $t_{Pt} = 0$ ). On observe que pour  $t_{Co} = 0,4$  nm les atomes de  $Mn$  ont diffusé dans toute la couche  $Co_{(3)}$  alors que pour  $t_{Co} = 0,6$  nm, la diffusion du  $Mn$  se limite à la première moitié de la couche  $Co_{(3)}$ . On retrouve ce résultat sur les profils de concentration présentés sur la figure IV-28.



**Figure IV-27 :** Distribution spatiale des atomes de  $Co$  et  $Mn$  dans une seule séquence des échantillons sans spacer de  $Pt$  pour : (a)  $t_{Co} = 0,4$  nm et (b)  $t_{Co} = 0,6$  nm.

On observe que la concentration atomique de  $Mn$  au centre de la couche  $Co_{(3)}$  pour  $t_{Co} = 0,4$  nm est proche de 20% pour une concentration maximale de  $Co$  voisine de 50%. Pour  $t_{Co} = 0,6$  nm, la concentration atomique de  $Mn$  est proche de 10% pour une concentration maximale de  $Co$  voisine de 60%. Bien que la diffusion du  $Mn$  et de l' $Ir$  dans la couche  $Co_{(3)}$  soit toujours présente, l'augmentation de  $t_{Co}$  mène de façon générale à des couches de  $Co$  globalement plus riches en  $Co$ .



**Figure IV-28 :** Profils de concentration de  $Co$ ,  $Pt$  et  $Mn$  dans la zone correspondant à la couche  $Co_{(3)}$  de l'échantillon :

(a)  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$  et (b)  $[(Pt/Co_{0,6nm})_3/IrMn]_7$ .

### IV.2.3 Mécanisme de diffusion

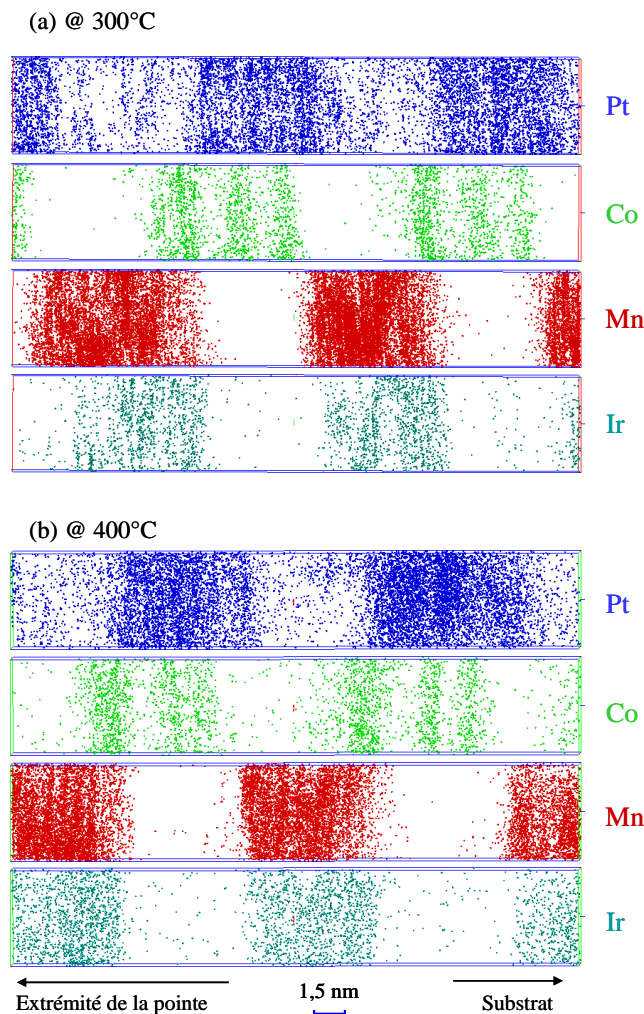
Les résultats de sonde atomique tomographique ont montré un mélange atomique entre les atomes de  $Co$ , de  $Mn$  et d' $Ir$  à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  dans l'échantillon sans spacer de  $Pt$ , et un mélange  $Co$ - $Pt$  dans les couches de  $Co$ . Les résultats obtenus par simulation numérique et par modélisation analytique ont montré que les mélanges atomiques observés sont intrinsèques au matériau, et se produisent durant la préparation des échantillons. Rappelons que les multicouches sont recuites à  $150^\circ C$  après le dépôt dans le but d'induire l'anisotropie magnétique d'échange. Afin d'étudier le mécanisme de diffusion des éléments  $Pt$ ,  $Co$ ,  $Ir$  et  $Mn$ , des échantillons de la multicouche  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ , sans spacer de  $Pt$ , ont été recuits à  $300^\circ C$ ,  $400^\circ C$ ,  $500^\circ C$  et  $700^\circ C$  puis caractérisés à l'échelle atomique par sonde atomique tomographique. Les échantillons ont été recuits une heure dans un four tubulaire sous vide secondaire pour éviter l'oxydation.

La figure IV-29 présente les reconstructions 3D d'un volume ( $5 \times 5 \times 30 \text{ nm}^3$ ) correspondant à deux séquences de la multicouche  $(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn$  recuite à  $300^\circ C$  et  $400^\circ C$ . Après



## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{0.4nm})_3/Pt_{tPt}/IrMn$

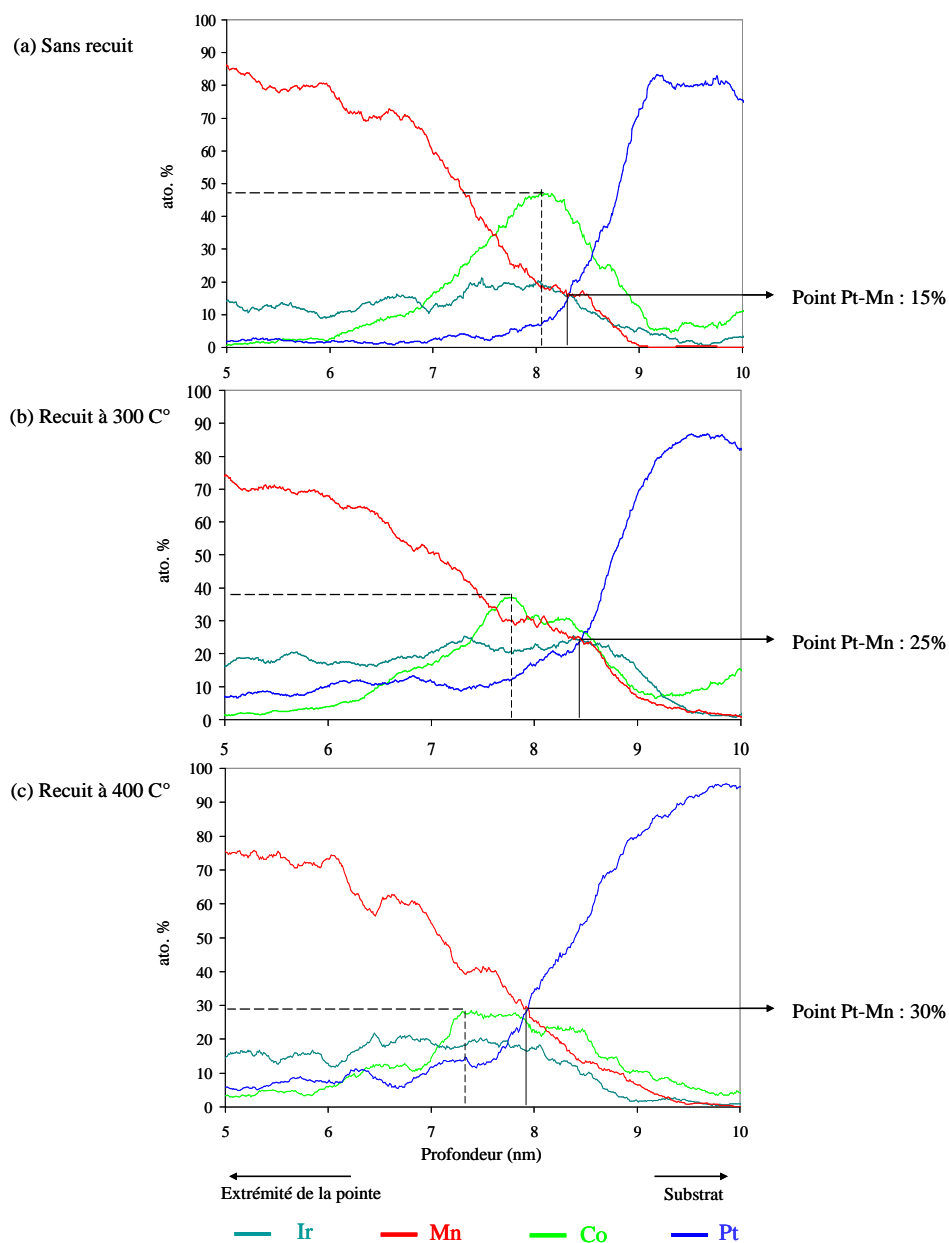
recuit à ces températures, la structure multicouche est toujours observable.



**Figure IV-29** : Projections 2D de la reconstruction 3D de la multicouche  $(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn$  présentant la distribution spatiale des atomes de Co, Pt, Ir et Mn dans deux séquences : (a) après recuit 1 heure à  $300^{\circ}C$  et (b) après recuit 1 heure à  $400^{\circ}C$ .

Les différentes couches sont toujours bien définies. En particulier, les couches de Co d'épaisseur nominale 0,4 nm sont toujours différenciées. Cependant, les profils de concentration de ces échantillons (figure IV-30) révèlent une évolution notable à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ . On constate que lorsque la température de recuit augmente, le pic de concentration de Co s'étale et son maximum se décale vers la couche  $IrMn$ . Ceci suggère que le Co de la couche  $Co_{(3)}$  diffuse lors du recuit vers la couche  $IrMn$ . D'autre part, le profil de concentration de Mn se décale vers la couche  $Pt_{(3)}$  au cours du recuit. Ceci se manifeste en particulier par l'augmentation progressive de la concentration au point où les profils de Mn et de Pt se coupent, de 15%

à 30%. Il apparaît ainsi que le  $Mn$  diffuse vers la couche de  $Pt_{(3)}$  au cours du recuit.

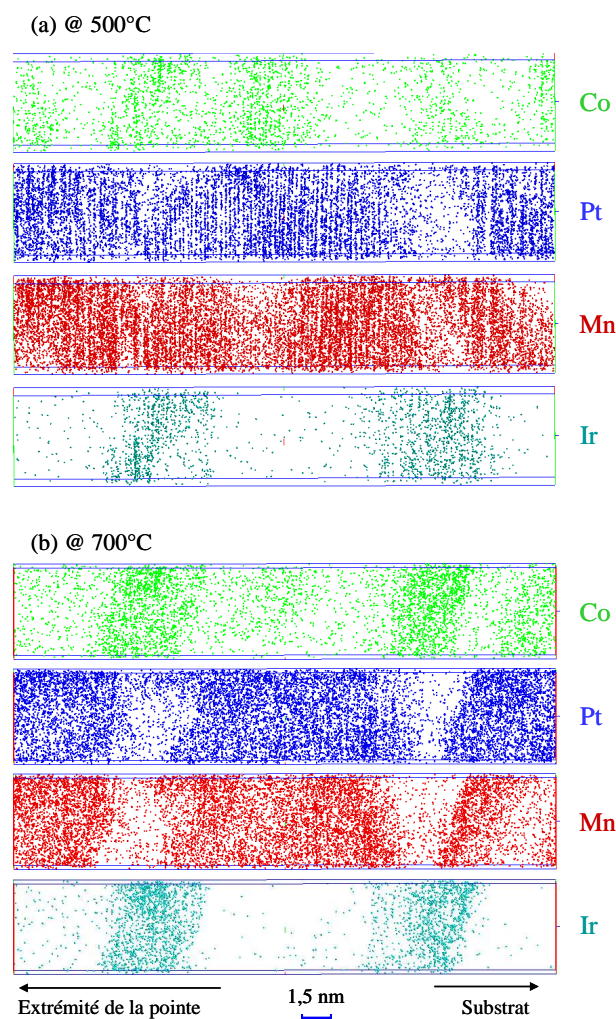


**Figure IV-30 :** Profils de concentration de  $Co$ ,  $Pt$ ,  $Ir$  et  $Mn$  dans la zone correspondant à la couche  $Co_{(3)}$  de la multicouche  $(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn$  : (a) sans recuit, (b) après recuit 1 heure à  $300^{\circ}C$  et (c) après recuit 1 heure à  $400^{\circ}C$ .

Après recuit à des températures plus élevées, la structure de la multicouche a considéra-

## IV.2. Caractérisation des multicouches $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_tPt/IrMn$

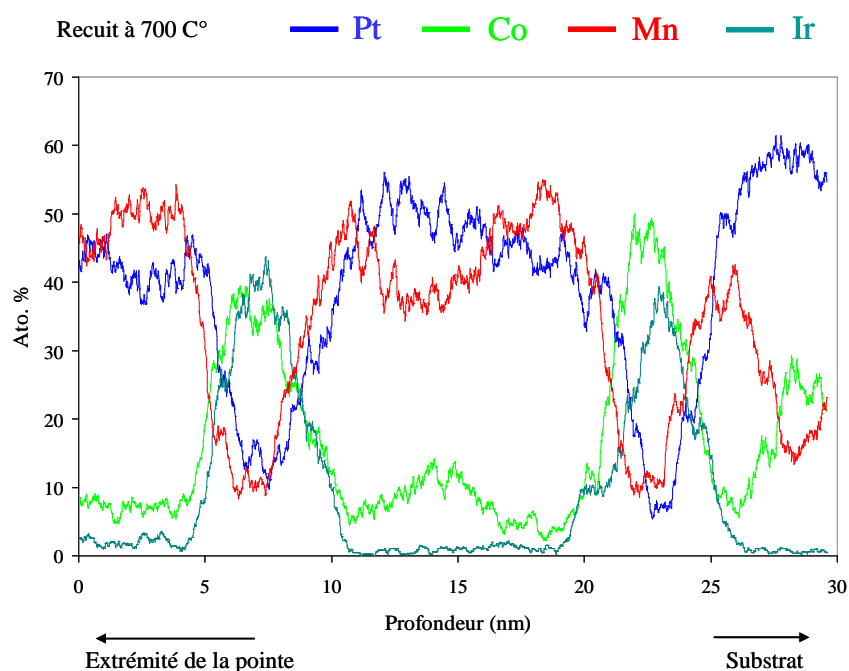
blement évolué, comme le montrent les reconstructions après recuit à 500°C et 700°C (figure IV-31). Après recuit à 500°C, on distingue toujours des zones riches en  $Ir$  et pauvres en  $Pt$ , alors que la répartition des atomes de  $Co$  et  $Mn$  est plus homogène qu'après recuit à des températures inférieures. La structure obtenue après recuit à la température la plus élevée (700°C) apparaît comme une alternance de couches  $Co-Ir$  et de couches  $Pt-Mn$ . Ceci est également révélé par les profils de concentration présentés sur la figure IV-32. Le  $Co$  et l' $Ir$ , espèces minoritaires dans la multicouche initiale, forment des couches moins épaisses que les couches formées par le  $Pt$  et le  $Mn$ , espèces majoritaires.



**Figure IV-31** : Projections 2D de la reconstruction 3D de la multicouche  $(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn$  présentant la distribution spatiale des atomes de  $Co$ ,  $Pt$ ,  $Ir$  et  $Mn$  dans deux séquences : (a) après recuit 1 heure à 500°C et (b) après recuit 1 heure à 700°C.

Ces résultats montrent qu'au cours du recuit, il y a interdiffusion du  $Co$  et du  $Mn$  : les atomes de  $Co$  quittent la multicouche  $(Pt/Co)_3$  pour migrer vers les zones  $IrMn$ , tandis que

les atomes de  $Mn$  quittent les zones  $IrMn$  pour migrer vers la multicouche  $(Pt/Co)_3$ . Les atomes d' $Ir$  se regroupent avec les atomes de  $Co$  dans des couches plus fines que les couches  $IrMn$  avant recuit. Les atomes de  $Pt$  se répartissent de manière plus homogène dans leurs couches initiales et se regroupent avec les atomes de  $Mn$  pour constituer des couches  $Pt-Mn$  plus épaisses que les couches  $(Pt/Co)_3$  initiales. Les épaisseurs des couches  $Co-Ir$  et  $Pt-Mn$  semblent cohérentes avec les proportions relatives des différentes espèces chimiques dans l'échantillon initial.



**Figure IV-32 :** Profils de concentration de  $Co$ ,  $Pt$ ,  $Ir$  et  $Mn$  de la multicouche  $((Pt/Co_{0,4nm})_3)/IrMn$  après recuit 1 heure à  $700^\circ C$ .

Ces résultats montrent que le  $Co$  a une forte affinité chimique avec l' $Ir$  et que le  $Mn$  a une forte affinité chimique avec le  $Pt$ . La forte affinité de  $Mn$  avec le  $Pt$  pourrait expliquer que, durant le dépôt, les atomes de  $Mn$  déposés sur le spacer de  $Pt$  sont stabilisés dans une zone  $Mn-Pt$ , bloquant leur propagation vers la couche  $Co_{(3)}$ . Dans ces conditions, le spacer de  $Pt$  n'agirait pas comme une barrière de diffusion, mais plutôt comme un piège à  $Mn$ , conduisant ainsi à une interface  $Co_{(3)}/IrMn$  abrupte, favorable à l'obtention de bonnes propriétés magnétiques interfaciales.

Dans le cas des échantillons avec une épaisseur de  $Co$  plus élevée (0,6 nm), l'effet du spacer de  $Pt$  serait limité par le fait que les atomes de  $Mn$  sont déposés sur une couche  $Co_{(3)}$  plus épaisse. La couche  $Co_{(3)}$  serait alors trop épaisse pour être affectée par l'implantation d'atomes de  $Mn$  sur toute son épaisseur. Il semble donc que le mélange  $Mn-Co$  dans la couche  $Co_{(3)}$

### IV.3. Corrélation nanostructure-propriétés magnétiques

soit dû plutôt à un effet balistique durant le dépôt qu'à une affinité chimique puisque ces deux éléments ne se retrouvent pas dans les mêmes zones après recuit.

## IV.3 Corrélation nanostructure-propriétés magnétiques

Les analyses en sonde atomique tomographique confirment les résultats obtenus par réflectométrie et diffraction de rayons X. Il a été montré sans ambiguïté que les échantillons sans spacer de *Pt* présentent une interface  $Co_{(3)}/IrMn$  très diffuse : les atomes d'*Ir* et *Mn* sont présents dans toute l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$ . Dans les échantillons avec spacer de *Pt*, les couches  $Co_{(3)}$  et *IrMn* sont clairement séparées, l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  étant beaucoup moins diffuse. L'utilisation de la sonde atomique a ainsi permis de caractériser le rôle du spacer de *Pt* en montrant que celui-ci agit comme une barrière de diffusion qui empêche les atomes d'*Ir* et de *Mn* de diffuser vers la couche  $Co_{(3)}$ . De plus, les couches de *Co* ne sont pas constituées de *Co* pur. Les atomes de *Co* sont mélangés avec les atomes de *Pt* constituant un mélange *Co-Pt* dans la multicouche  $(Pt/Co)_3$ .

L'étude des propriétés magnétiques a été présentée dans le chapitre III. Les valeurs du champ d'échange  $H_E$  et de l'aimantation à saturation  $M_S$  (tableaux III-8 et III-9) ont été déduites des cycles d'hystérésis à 5 et 300 K. Il a été montré que l'insertion d'un spacer de *Pt* d'épaisseur nominale 0,4 nm dans les multicouches avec  $t_{Pt} = 0,4$  nm augmente les valeurs de  $H_E$  et de  $M_S$ . Cet effet n'est pas observé pour les multicouches d'épaisseur de *Co* plus importante (échantillons avec  $t_{Co} = 0,6$  nm). Enfin, les valeurs de  $H_E$  et de  $M_S$  des échantillons sans spacer sont toujours plus élevées pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,6$  nm que pour celles avec  $t_{Co} = 0,4$  nm.

Les évolutions de  $H_E$  et  $M_S$  avec les épaisseurs des couches de *Co* et du spacer de *Pt* peuvent alors être interprétées, pour les échantillons avec  $n = 7$  (échantillons analysés en sonde atomique), à la lumière des résultats de l'analyse nanostructurale.

#### IV.3.1 Champ d'échange $H_E$

L'insertion du spacer de *Pt* augmente le champ d'échange  $H_E$  pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm. En revanche, elle le diminue pour ceux avec  $t_{Co} = 0,6$  nm. Ces deux effets contradictoires s'expliquent :

Dans les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm sans spacer de *Pt*, la forte diffusion des atomes d'*Ir* et de *Mn* dans la couche  $Co_{(3)}$ , perturbe fortement l'anisotropie perpendiculaire de la couche  $Co_{(3)}$ . Il en résulte une désorientation des spins et une diminution probable de la constante

d'anisotropie. En conséquence, le champ d'échange  $H_E$  diminue. L'insertion du spacer de  $Pt$ , en empêchant la diffusion des atomes d' $Ir$  et de  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$ , provoque un renforcement de l'anisotropie perpendiculaire des spins de  $Co$  de la couche  $Co_{(3)}$ . Il en résulte un meilleur couplage d'échange à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  et par conséquent, une augmentation de  $H_E$ .

Dans les échantillons avec  $t_{Co} = 0,6$  nm sans spacer de  $Pt$ , l'épaisseur des couches de  $Co$  est trop importante pour que les atomes d' $Ir$  et de  $Mn$  diffusent de manière importante dans la couche  $Co_{(3)}$ . L'anisotropie perpendiculaire de la couche  $Co_{(3)}$  n'est donc pas perturbée. Ainsi, le couplage d'échange est plus important et, par conséquent, le champ d'échange  $H_E$  est plus grand que dans les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm. Par conséquent, l'insertion d'un spacer de  $Pt$ , qui limite la diffusion des atomes d' $Ir$  et de  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$ , a peu d'effet sur l'anisotropie perpendiculaire de la couche  $Co_{(3)}$ . En revanche, le spacer de  $Pt$ , en perturbant l'interaction d'échange directe à courte distance entre les spins des ions de  $Mn$  et de  $Co$ , diminue le couplage magnétique perpendiculaire entre ces spins et corrélativement  $H_E$ . C'est très probablement la raison pour laquelle, dans ces échantillons,  $H_E$  est plus élevé en l'absence qu'en présence d'un spacer de  $Pt$ .

Il apparaît que le spacer de  $Pt$  joue sur l'interaction magnétique d'échange au niveau de l'interface FM/AFM un triple rôle : il renforce l'orientation perpendiculaire des spins de  $Co$  par l'ajout d'une interface  $Co/Pt$  [Sor 05a], il agit comme une barrière de diffusion contre la diffusion de  $Mn$  et  $Ir$  dans la couche  $Co_{(3)}$  [Lec 09], mais il tend aussi à diminuer les interactions d'échange à l'interface FM/AFM qui sont des interactions de courte portée. Ainsi, lorsque l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  est trop faible pour ne pas être totalement affectée par la diffusion de l' $Ir$  et du  $Mn$ , les deux premiers effets prédominent et l'introduction d'un spacer de  $Pt$  conduit à une augmentation de  $H_E$ . Lorsque l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  est suffisamment importante pour que l' $Ir$  et le  $Mn$  n'y pénètrent pas totalement, c'est le troisième effet qui prédomine et l'introduction d'un spacer de  $Pt$  conduit à une diminution de  $H_E$ .

### IV.3.2 Aimantation à saturation $M_S$

A 5 K, les valeurs de l'aimantation à saturation  $M_S$  des deux types d'échantillons avec spacer de  $Pt$  sont pratiquement identiques ( $1474$  et  $1458$   $uem.cm^{-3}$ ) et proches de celles du cobalt massif ( $1400$   $uem.cm^{-3}$ ). Ceci peut s'expliquer par le fait qu'avec le spacer, et quelle que soit l'épaisseur des couches de cobalt, il n'y a pas d'interdiffusion à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  susceptible de diminuer l'aimantation des couches. Les valeurs plus faibles de  $M_S$  mesurées à 5 K dans les échantillons sans spacer sont en effet attribuées à la présence d' $Ir$  et de  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$ , qui conduit à une réduction de  $M_S$ , plus marquée dans l'échantillon avec  $t_{Co} =$

## IV.4. Conclusion du chapitre IV

0,4 nm, pour lequel la couche  $Co_{(3)}$  est totalement affectée par la présence d' $Ir$  et de  $Mn$ , que dans l'échantillon avec  $t_{Co} = 0,6$  nm, pour lequel la couche  $Co_{(3)}$  n'est pas totalement affectée par la présence d' $Ir$  et de  $Mn$ .

A 300 K, les valeurs de  $M_S$  pour  $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm deviennent différentes (1025 et 1208  $uem.cm^{-3}$  respectivement), l'aimantation à saturation étant d'autant plus grande que l'épaisseur des couches de cobalt est grande. Cette tendance ne peut être associée à des effets d'interdiffusion, puisque qu'il n'y en a pas dans les échantillons avec spacer de  $Pt$ . Elle est attribuée à l'influence de l'épaisseur des couches de  $Co$  sur la température de Curie des multicouches, la température de Curie de l'échantillon avec  $t_{Co} = 0,4$  nm étant plus faible que celle de l'échantillon avec  $t_{Co} = 0,6$  nm [Met 07]. La même tendance, qui peut donc être attribuée au même effet, est observée dans les échantillons sans spacer de  $Pt$ . Le fait qu'à 300 K, les valeurs de  $M_S$  soient plus faibles pour les échantillons sans spacer que pour les échantillons avec spacer est attribué à des effets d'interdiffusion, en relation avec la présence d' $Ir$  et de  $Mn$  dans la couche  $Co_{(3)}$ .

## IV.4 Conclusion du chapitre IV

Les analyses nanostructurales à l'échelle atomique effectuées par sonde atomique tomographique sur les multicouches  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_7$  ont permis de caractériser la structure de l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$  et d'étudier l'influence du spacer de  $Pt$  introduit entre la couche FM et la couche AFM.

Les différents artefacts de mesure introduits par la sonde atomique ont été évalués, d'une part en analysant le procédé de reconstruction utilisé et, d'autre part, en modélisant l'évaporation de la multicouche. Les multicouches analysées étant constituées de couches atomiques de natures chimiques différentes, ayant des champs d'évaporation différents, le rayon de courbure global de la pointe est modifié lors de l'évaporation, ce qui entraîne une forte différence de densité entre les phases à bas champ et les phases à haut champ. Ceci constitue l'un des artefacts de mesure introduit par la sonde atomique qui se traduit par l'élargissement des pics sur les profils de concentration et dont nous avons tenu compte dans le modèle de convolution proposé.

Cette analyse nous a ainsi permis de montrer que les multicouches étudiées ne sont pas constituées de couches pures, mais présentent un mélange  $Ir-Mn-Co$  aux interfaces  $Co/IrMn$ , un mélange  $Co-Pt$  au niveau des couches de  $Co$  ainsi qu'une distribution des atomes de  $Co$  sur une épaisseur très supérieure à la valeur nominale.

Les analyses en sonde atomique tomographiques des échantillons étudiés ont permis de

mettre en évidence le rôle du spacer de *Pt* à l'interface *Co/IrMn* sur la structure des échantillons, en relation avec l'épaisseur nominale  $t_{Co}$  des couches de *Co*. Les résultats obtenus ont montré qu'en l'absence de spacer, les atomes d'*Ir* et de *Mn* diffusent, lors de la préparation des échantillons, dans la couche de *Co* sur laquelle la couche *IrMn* est déposée. Dans les conditions de dépôt, les atomes d'*Ir* et de *Mn* se retrouvent sur toute l'épaisseur de la couche de *Co* si  $t_{Co} = 0,4$  nm. Si la couche de *Co* est plus épaisse ( $t_{Co} = 0,6$  nm dans cette étude), les atomes d'*Ir* et de *Mn* ne diffusent que sur une partie de la couche seulement. Le spacer de *Pt*, en empêchant la diffusion de l'*Ir* et du *Mn* dans la couche de *Co*, agit donc comme une barrière de diffusion.

L'étude de mécanisme de diffusion, après recuit à différentes températures, des éléments *Pt*, *Co*, *Ir* et *Mn* dans la multicouche  $[(Pt/Co_{0,4nm})_3/IrMn]_7$ , sans spacer de *Pt*, montre qu'au cours du recuit, il y a interdiffusion du *Co* et du *Mn*. A partir de  $500^\circ\text{C}$ , les atomes de *Co* se regroupent avec les atomes d'*Ir* constituant des couches *Co-Ir*, et les atomes de *Mn* se regroupent avec les atomes de *Pt* pour constituer des couches *Pt-Mn*. Ces résultats ont montré que la forte affinité chimique de *Mn* avec le *Pt* pourrait montrer le rôle du spacer de *Pt* comme un piège à *Mn*, conduisant à une interface  $Co_{(3)}/IrMn$  abrupte, et par conséquent, des bonnes propriétés magnétiques interfaciales.

Les résultats des analyses nanostructurales ont été corrélés aux propriétés magnétiques des multicouches, afin de caractériser l'influence du spacer de *Pt* sur le champ d'échange et l'aimantation à saturation.

L'insertion du spacer de *Pt* à l'interface *Co/IrMn* agit de fait comme barrière de diffusion et, par voie de conséquence, renforce l'orientation perpendiculaire des spins de *Co*. Ces deux effets conduisent à une augmentation du champ d'échange. En revanche, le spacer éloigne les spins de *Co* des spins de *Mn*, ce qui diminue les interactions d'échange directes à courte portée entre ces spins et donc le champ d'échange. Pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm, les deux premiers effets prévalent sur le troisième, et l'insertion d'un spacer de *Pt* conduit à une augmentation du champ d'échange. Pour les échantillons avec  $t_{Co} = 0,6$  nm, le troisième effet prévaut sur les deux premiers parce que l'épaisseur de la couche de *Co* est trop importante pour que les effets de la diffusion soient prépondérants, et l'insertion d'un spacer de *Pt* conduit à une diminution du champ d'échange.

Enfin, en tant que barrière de diffusion, le spacer de *Pt* permet d'obtenir à l'interface *Co/IrMn* une couche de *Co* dont l'aimantation n'est pas affectée par la présence d'atomes d'*Ir* et de *Mn*, ce qui conduit, quelle que soit l'épaisseur nominale de cette couche de *Co*, à une aimantation à saturation plus élevée. La variation thermique de l'aimantation est, par ailleurs, directement liée aux variations de la température de Curie avec l'épaisseur de la couche de *Co*.





# **Conclusion générale**

## Conclusion générale

Dans ce mémoire, nous avons étudié les propriétés structurales à l'échelle atomique de multicouches magnétiques à anisotropie d'échange perpendiculaire de type  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$ , afin de déterminer les influences de l'épaisseur de la couche de  $Co$  ( $t_{Co} = 0,4$  et  $0,6$  nm) et d'un spacer de  $Pt$  ( $t_{Pt} = 0$  et  $0,4$  nm) sur les propriétés magnétiques et en particulier sur le champ d'échange  $H_E$ .

Des échantillons  $[(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn]_n$  constitués  $n = 7$  répétitions de la séquence  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  ont été préparés par pulvérisation cathodique pour l'analyse structurale en sonde atomique tomographique. Des échantillons avec  $n = 1$  séquence ont également été préparés, afin de caractériser l'influence du nombre de répétitions de la séquence FM/AFM sur les propriétés magnétiques. Quelles que soient les épaisseurs de la couche de  $Co$  ( $t_{Co}$ ) et du spacer de  $Pt$  ( $t_{Pt}$ ), les cycles d'hystérésis des multicouches avec  $n = 1$  sont rectangulaires, alors que les cycles des multicouches avec  $n = 7$ , sont inclinés. Ceci est lié au fait que les multicouches sont monodomaines pour  $n = 1$  et multidomaines pour  $n = 7$ . Les propriétés magnétiques (champ d'échange  $H_E$  et aimantation à saturation  $M_S$ ) ont été mesurées pour tous les échantillons.

La structure des multicouches a été analysée préalablement par réflectométrie de rayons X aux petits angles. Cette étude a permis de montrer que les épaisseurs de toutes les couches sont proches des valeurs nominales, excepté pour la multicouche sans spacer de  $Pt$  où l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  (couche de  $Co$  à l'interface  $Co/IrMn$ ) est nettement plus faible que sa valeur nominale. Les rugosités de toutes les couches sont proches de  $0,4$  nm, excepté celle de la couche  $Co_{(3)}$  qui est beaucoup plus élevée, de l'ordre de  $1,2$  nm. Par contre, dans l'échantillon avec spacer, la couche  $Co_{(3)}$  est d'épaisseur sensiblement identique à celle des deux autres couches et sa rugosité est beaucoup plus faible que dans l'échantillon sans spacer. Cela nous a conduit à suggérer d'une part, que la couche  $Co_{(3)}$  est beaucoup plus diffuse dans la multicouche sans spacer que dans la multicouche avec spacer et, d'autre part, que le spacer de  $Pt$  a pour effet de réduire le mélange entre les atomes de  $Co$ ,  $Ir$  et  $Mn$  à l'interface  $Co/IrMn$ . De plus, le fait que les valeurs de l'épaisseur et de la rugosité des couches  $Co_{(1)}$  et  $Co_{(2)}$  soient proches, suggère l'existence d'un mélange  $Co-Pt$  dans la multicouche  $(Pt/Co)_3$ .

Les résultats de diffraction X aux grands angles confirment ce qui a été observé par réflectométrie de rayons X aux petits angles. Ces résultats montrent un mélange entre les atomes de  $Co$  et de  $Pt$  dans les multicouches  $(Co/Pt)_3$  avec des caractéristiques proches de celles de la phase  $CoPt_3$ .

La caractérisation à l'échelle atomique de la nanostructure de ces multicouches a été effectuée par sonde atomique tomographique. Pour la première fois, des multicouches magnétiques

aux épaisseurs sub-nanométriques ont pu être évaporées, analysées et reconstruites. Cependant, pour de tels échantillons, contenant des couches ultra minces, les artefacts de mesure introduits par la sonde doivent être considérés, qualitativement et quantitativement. C'est pourquoi ils ont été pris en compte dans les procédés de reconstruction et dans les modèles de simulation afin de caractériser au mieux la structure des multicouches. Les différents champs d'évaporation des atomes constituant un échantillon multicouche provoquent une forte différence entre les valeurs de la densité des atomes détectés dans chacune des couches, qui se traduit par un étalement des pics sur les profils de concentration. Le modèle de convolution que nous avons élaboré et le modèle de simulation que nous avons utilisé ont permis d'obtenir des profils très proches des profils expérimentaux. Ces deux modèles ont conduit à des résultats qui ont montré que nos multicouches ne sont pas constituées de couches pures de *Pt* et *Co* mais présentent, en accord avec les résultats des analyses par diffraction de rayons X aux grands angles, des mélanges *Co-Pt* au niveau des couches de *Co* ainsi qu'une distribution des atomes de *Co* sur une épaisseur supérieure à la valeur nominale.

Une attention particulière a été portée à l'analyse de l'interface FM/AFM, où est déposée le spacer de *Pt*. Les résultats de l'analyse structurale ont mis en évidence, dans les échantillons sans spacer, la présence d'*Ir* et de *Mn* dans la couche  $Co_{(3)}$  à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ , traduisant une diffusion de ces espèces chimiques durant le dépôt des couches. La profondeur de pénétration de l'*Ir* et du *Mn* est telle que ces éléments se retrouvent sur toute l'épaisseur de la couche  $Co_{(3)}$  dans les échantillons avec  $t_{Co} = 0,4$  nm, et sur une partie seulement de la couche  $Co_{(3)}$  dans les échantillons avec  $t_{Co} = 0,6$  nm. Ainsi, lorsqu'elle est suffisamment épaisse, une partie de la couche  $Co_{(3)}$  n'est pas affectée par la diffusion. L'augmentation de l'épaisseur des couches de *Co* se manifeste alors par une concentration de *Co* plus importante au cœur des couches. Dans les échantillons avec spacer, la concentration en *Ir* et *Mn* dans la couche  $Co_{(3)}$  est extrêmement réduite, quelle que soit l'épaisseur de la couche de  $Co_{(3)}$ . Ce résultat montre qu'en empêchant la diffusion de *Mn* et *Ir* dans la couche  $Co_{(3)}$ , le spacer de *Pt* agit comme une barrière de diffusion.

L'effet du spacer de *Pt* sur les propriétés magnétiques (champ d'échange  $H_E$  et aimantation à saturation  $M_S$ ) des multicouches a alors pu être caractérisé.

L'insertion du spacer de *Pt* augmente les valeurs de  $H_E$  à 5 K et à 300 K pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  nm mais diminue les valeurs de  $H_E$  pour celles avec  $t_{Co} = 0,6$  nm. Pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  nm, le spacer empêche la diffusion des atomes d'*Ir* et de *Mn* dans la couche  $Co_{(3)}$ , ce qui renforce l'anisotropie perpendiculaire des spins de *Co* de la couche  $Co_{(3)}$ , entraîne un meilleur couplage d'échange à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ , et par consé-

## Conclusion générale

---

quent, conduit à une augmentation de  $H_E$ . En revanche, pour les multicouches avec  $t_{Co} = 0,6$  nm sans spacer de *Pt*, la diffusion des atomes d'Ir et de Mn dans la couche  $Co_{(3)}$  est beaucoup plus limitée relativement à l'épaisseur totale de la couche  $Co_{(3)}$ . Le couplage d'échange direct entre les spins de *Co* et de *Mn* est plus important et la valeur de  $H_E$  plus élevée. L'insertion du spacer de *Pt* perturbe l'interaction d'échange à courte distance entre les spins de *Mn* et de *Co*, diminue le couplage magnétique perpendiculaire entre ces spins et, corrélativement,  $H_E$ .

Par ailleurs, l'insertion du spacer de *Pt* augmente les valeurs de  $M_S$  quelle que soit l'épaisseur des couches de *Co*. Ceci est dû à la diminution de l'interdiffusion à l'interface  $Co_{(3)}/IrMn$ .

Ainsi, les résultats de notre étude révèlent que l'insertion du spacer de *Pt* à l'interface FM/AFM se traduit sur  $H_E$  par trois effets. D'une part, elle renforce l'orientation perpendiculaire des spins de *Co* de la couche  $Co_{(3)}$  par le simple ajout d'une interface *Co/Pt* supplémentaire (l'anisotropie perpendiculaire étant principalement due à un phénomène interfacial entre les atomes de *Co* et *Pt*) et agit comme une barrière de diffusion vis-à-vis des atomes d'Ir et de *Mn* durant le dépôt. Ces deux effets conduisent à une augmentation de  $H_E$ . D'autre part, le spacer de *Pt* éloigne les spins de *Co* des spins de *Mn*, diminuant ainsi les interactions d'échange directes à courte portée entre ces spins. Ce troisième effet conduit à une diminution de  $H_E$ . Dans les multicouches avec  $t_{Co} = 0,4$  nm les deux premiers effets prévalent sur le troisième. Dans les multicouches avec  $t_{Co} = 0,6$  nm, le troisième effet prévaut sur les deux premiers.

Plusieurs modèles théoriques ont été développés pour comprendre les différents mécanismes physiques de l'anisotropie d'échange qui entrent en jeu dans le calcul du champ d'échange. Les modèles, qui donnent des valeurs du  $H_E$  proches des valeurs expérimentales, suggèrent que l'interface n'est pas parfaitement plane. Les résultats de notre étude confirment que les modèles les plus proches de la réalité sont ceux qui prennent en compte la rugosité à l'interface, et qui montrent ainsi que l'amélioration de l'anisotropie d'échange à l'interface peut être effectuée par la diminution de la rugosité à l'interface FM/AFM.

Avant le commencement de notre étude, la caractérisation structurale des multicouches par sonde atomique tomographique avait été effectuée sur des multicouches constituées de couches d'épaisseurs supérieures à quelques nanomètres. Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse a nécessité une étude approfondie des mécanismes d'évaporation et de reconstruction d'un échantillon hétérogène aux dimensions caractéristiques sub-nanométriques, permettant ainsi une meilleure compréhension des artefacts liés à l'analyse de ce type d'objet. C'est la prise en compte de ces artefacts qui a rendu possible la caractérisation structurale à l'échelle atomique de multicouches sub-nanométriques. Nous sommes aujourd'hui capables d'évaporer, de

---

reconstruire et de caractériser à l'échelle atomique de telles multicouches complexes.

Cette étude, en corrélant très précisément propriétés magnétiques et propriétés structurales, a ainsi permis de mieux comprendre les propriétés magnétiques sensibles à la structure des interfaces telles que le phénomène d'anisotropie d'échange. Aujourd'hui, l'intérêt se porte également sur des multicouches comportant des oxydes, tels que l'alumine ou le  $MgO$ , utilisés par exemple dans les jonctions tunnel. Dans ces jonctions, ces deux oxydes constituent une barrière isolante, d'épaisseur très faible, de l'ordre du nm, dont la conductivité relève de l'effet tunnel. Une analyse par sonde atomique tomographique de ce type de multicouches, en corrélant étroitement les propriétés d'interface aux propriétés magnétiques et de transport, permettra de progresser dans l'étude de ces nouveaux matériaux.

Ce travail de thèse trouvera naturellement son prolongement dans la caractérisation d'autres types de multicouches magnétiques sub-nanométriques.

---

## Liste des communications scientifiques

### *Publications*

" *Characterization of  $(Pt_{2nm}/Co_{0.4nm})_3/Pt_x/IrMn_{7nm}$  multilayers by tomographic atom probe : On the role of a Pt spacer "*

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, F. Cuvilly, J. M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq, and B. Dieny

**Journal of Applied Physics 105 (2009) 103912**

" *Structural analysis of a  $(Pt/Co)_3/IrMn$  multilayer : investigation of sub-nanometric layers by Tomographic Atom Probe "*

R. Lardé, L. Lechevallier, A. Zarefy, A. Bostel, J Juraszek, J.M. Le Breton, B. Rodmacq, and B. Dieny

**Journal of Applied Physics 105 (2009) 084307**

" *Structural analysis and magnetic properties of  $(Pt/Co)_3/Pt_{tPt}/IrMn$  multilayers "*

L. Lechevallier, A. Zarefy, R. Lardé, H. Chiron, J. M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq, and B. Dieny

**Physical Review B 79 (2009) 174434**

" *Interface characterization of a  $(Pt/Co)_3/IrMn$  multilayer by laser-assisted tomographic atom probe "*

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, F. Cuvilly, J. M. Le Breton, B. Rodmacq, and B. Dieny

**Journal of Magnetism and Magnetic Materials 322 (2010) 1293**

" *Bimodal distribution of blocking temperature in exchange-biased ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers "*

V. Baltz, B. Rodmacq, A. Zarefy, L. Lechevallier, and B. Dieny

**Physical Review B 81 (2010) 052404**

" *Influence of Co layer thickness on the structural and magnetic properties of  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  multilayers "*

A Zarefy, L Lechevallier, R Lardé, H Chiron, J-M Le Breton, V Baltz, B Rodmacq and B Dieny

**Journal of Physics D : Applied Physics 43 (2010) 215004**

---

## Conférences

### Oraux

" *Characterization of  $(Pt/Co)_3/Pt_x/IrMn$  multilayers by tomographic atom probe. Influence of the Pt spacer "*

R. Lardé, A.Zarefy, L. Lechevallier and J.M. Le Breton

**Joint European Magnetic Symposia, September 2008, Dublin, Irlande**

" *Caractérisation des interfaces de multicouches  $(Pt/Co)_3/IrMn$  par sonde atomique tomographique : Influence de l'insertion d'une couche de Pt à l'interface FM/AFM "*

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, J.M. Le Breton

**12<sup>me</sup> colloque Louis Néel, Septembre 2008, La Grande Motte, France**

### Posters

" *Atomic scale characterization of the  $(Pt/Co)_3/IrMn$  multilayers by Laser Assisted Tomographic Atom Probe "*

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, J. M. Le Breton, B. Rodmacq, and B. Dieny

**51<sup>st</sup> International Field Emission Symposium, June 2008, Rouen, France**

" *Structural characterization of interfaces in some exchange coupled magnetic multilayers by Tomographic Atom Probe "*

R. Lardé, A. Grenier, A. Zarefy, J. M. Le Breton, E. Cadel, L. Lechevallier, J. Juraszek, J. Teillet, N. Tiercelin, P. Pernod, B. Rodmacq, and B. Dieny

**51<sup>st</sup> International Field Emission Symposium, June 2008, Rouen, France**

" *Caractérisation par sonde atomique tomographique de multicouches  $(Pt/Co)_3/IrMn$  à anisotropie d'échange perpendiculaire "*

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, J. M. Le Breton, B. Rodmacq, and B. Dieny

**Doctoriales Normandie, novembre 2008, Saint Valery en Caux, France**

" *Influence of the thickness of the Co layer on the structural and magnetic properties of  $[(Pt/Co)_3/Pt_x/IrMn]_7$  multilayers "*

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, J. M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq and B. Dieny

**International Conference on Magnetism, July 2009, Karlsruhe, Germany**



---

" *Influence of the thickness of the Co and Pt layers on the structural and magnetic properties of  $[(Pt/Co)_3/Pt_x/IrMn]_7$  multilayers* "

A. Zarefy, R. Lardé, L. Lechevallier, J. M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq and B. Dieny  
**13<sup>me</sup> colloque Louis Néel, Mars 2010, Alsace, France**

" *Distribution bimodale des spins d'antiferromagnétique responsables de l'anisotropie d'échange* "

V. Baltz, P. Somani, B. Rodmacq, A. Zarefy, L. Lechevallier, B. Dieny  
**13<sup>me</sup> colloque Louis Néel, Mars 2010, Alsace, France**

" *Structural characterization of interfaces in exchange-coupled magnetic multilayers and relation with their magnetic properties* "

R. Lardé, J. M. Le Breton, A. Grenier, A. Zarefy, L. Lechevallier, J. Juraszek, NI Tiercelin, P. Pernod, V. Baltz, B. Rodmacq and B. Dieny

**2<sup>nd</sup> International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications, July 2010, Sendai, Japon**

# **Bibliographie**

## Bibliographie

---

- [Ayo 99] A. A. Ayon, R. Braff, C. C. Lin, H. H. Sawin, and M. A. Schmidt. “*Characterization of a Time Multiplexed Inductively Coupled Plasma Etcher*”. J. Electrochem. Soc., **146** (1999) 339. 60
- [Bai 88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. “*Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*”. Phys. Rev. Lett., **61** (1988) 2472. 36
- [Bal 05] V. Baltz. *Effets de taille finie sur les couplages magnétostatiques et l’anisotropie d’échange dans le domaine de l’enregistrement magnétique*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2005. 14, 42, 43
- [Bal 07] V. Baltz, A. Marty, B. Rodmacq, and B. Dieny. “*Magnetic domain replication in interacting bilayers with out-of-plane anisotropy : Application to Co/Pt multilayers*”. Phys. Rev. B, **75** (2007) 014406. 86
- [Bal 10] V. Baltz, B. Rodmacq, A. Zarefy, L. Lechevallier, and B. Dieny. “*Bimodal distribution of blocking temperature in exchange-biased ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers*”. Phys. Rev. B, **81** (2010) 052404. 45
- [Bas 95] P. Bas, A. Bostel, B. Deconihout, and D. Blavette. “*A general protocol for the reconstruction of 3D atom probe data*”. Appl. Surf. Sci., **87** (1995) 298. 57, 90
- [Bas 97] P. Bas. *Reconstruction tridimensionnelle des images de tomographie atomique*. PhD thesis, Université de Rouen, 1997. 56, 90
- [Ber 94] G. A. Bertero and R. Sinclair. “*Structure-property correlations in Pt/Co multilayers for magneto-optic recording*”. J. Magn. Magn. Mater., **134** (1994) 173. 41
- [Ber 95] G. A. Bertero, R. Sinclair, C. H. Park, and Z. X. Shen. “*Interface structure and perpendicular magnetic anisotropy in Pt/Co multilayers*”. J. Appl. Phys., **77** (1995) 3953. 41
- [Ber 99] A. E. Berkowitz and K. Takano. “*Exchange anisotropy - a review*”. J. Magn. Magn. Mater., **200** (1999) 552. 28
- [Bes 85] J. J. Bessot. “*Dépôts par pulvérisation cathodique*”. Techniques de l’Ingénieur,, (1985) p M1657. 52
- [Bil 05] A. Billard and F. Perry. “*Pulvérisation cathodique magnétron*”. Techniques de l’Ingénieur,, (2005) p M1654. 52
- [Bin 89] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. “*Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*”. Phys. Rev. B, **39** (1989) 4828. 36

- 
- [Bla 93a] D. Blavette, A. Bostel, J. M. Sarrau, B. Deconihout, and A. Menand. “An atom probe for three-dimensional tomography”. *Nature*, **363** (1993) 432. 23, 54
- [Bla 93b] D. Blavette, B. Deconihout, A. Bostel, J. M. Sarrau, M. Bouet, and A. Menand. “The tomographic atom probe : A quantitative three-dimensional nanoanalytical instrument on an atomic scale”. *Rev. Sci. Instrum.*, **64** (1993) 2911. 23
- [Blo 96] D. Bloyet and C. Gunther. “Les SQUID et leurs applications”. *Techniques de l’Ingénieur*, (1996) R928. 67
- [Cai 90] W. C. Cain and M. H. Kryder. “Investigation of the exchange mechanism in NiFe-TbCo bilayers”. *J. Appl. Phys.*, **67** (1990) 5722. 35
- [Cam 03] J. Camarero, Y. Pennec, J. Vogel, M. Bonfim, S. Pizzini, F. Ernult, F. Fettar, F. Garcia, F. Lançon, L. Billard, B. Dieny, A. Tagliaferri, and N. B. Brookes. “Perpendicular Interlayer Coupling in  $Ni_{80}Fe_{20}/NiO/Co$  Trilayers”. *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003) 027201. 86
- [Cer 88] A. Cerezo, T. J. Godfrey, and G. D. W. Smith. “Application of a position-sensitive detector to atom probe microanalysis”. *Rev. Sci. Instrum.*, **59** (1988) 862. 54
- [Che 00] S. F. Cheng and P. Lubitz. “Structural and magnetic studies of exchange bias films of  $Ir(20)Mn(80)$ ”. *J. Appl. Phys.*, **87** (2000) 4927. 45
- [Cho 92] N. H. Cho, K. M. Krishnan, C. A. Lucas, and R. F. C. Farrow. “Microstructure and magnetic anisotropy of ultrathin Co/Pt multilayers grown on GaAs (111) by molecular-beam epitaxy”. *J. Appl. Phys.*, **72** (1992) 5799. 41, 81
- [Coe 02] R. Coehoorn, J. T. Kohlhepp, R. M. Jungblut, A. Reinders, and M. J. Dekker. “Mesoscopic magnetism and the phenomenon of exchange anisotropy : MBE grown  $Cu(110)/Ni_{80}Fe_{20}/Fe_{50}Mn_{50}$  bilayers with corrugated interfaces”. *Physica B*, **319** (2002) 141. 13, 28, 31
- [Den 62] F. Denarles and C. Duval. “Mesures et Analyses”. *Techniques de l’ingénieur*, (1962) p1080. 63
- [Dev 98] A. J. Devasahayam, P. J. Sides, and M. H. Kryder. “Magnetic, temperature, and corrosion properties of the NiFe/IrMn exchange couple”. *J. Appl. Phys.*, **83** (1998) 7216. 45
- [Die 00] B. Dieny and J. M. Fedeli. “Capteurs magnétorésistifs”. *Techniques de l’Ingénieur*, (2000) R 416. 36, 38
- [Die 04] B. Dieny. *Spin valves, in Magnetolectronics*. edited by M. Johnson, Elsevier Academic Press, 67, 2004. 39

## Bibliographie

---

- [Die 91] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri. “Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers”. *Phys. Rev. B*, **43** (1991) 1297. 26, 36
- [Die 99] B. Dieny. *Dans Magnétisme, II-Matériaux et applications, Couches minces et multicouches magnétiques*. Presses Universitaires de Grenoble, 1999. 41, 50, 52
- [Dij 05] S. van Dijken, J. Moritz, and J. M. D. Coey. “Correlation between perpendicular exchange bias and magnetic anisotropy in  $\text{IrMn}/[\text{Co}/\text{Pt}]_n$  and  $[\text{Pt}/\text{Co}]_n/\text{IrMn}$  multilayers”. *J. Appl. Phys.*, **97** (2005) 063907-4. 36
- [Ern 02] F. Ernult. *Anisotropie d'échange et frustration magnétique dans des bicouches ferro/antiferro et des tricouches ferro/antiferro/ferromagnétiques*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2002. 22
- [Fit 07] M. R. Fitzsimmons, B. J. Kirby, S. Roy, Z.-P. Li, I. V. Roshchin, S. K. Sinha, and I. K. Schuller. “Pinned magnetization in the antiferromagnet and ferromagnet of an exchange bias system”. *Phys. Rev. B*, **75** (2007) 214412. 27
- [Fuk 97] H. N. Fuke, K. Saito, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, and M. Sahashi. “Spin-valve giant magnetoresistive films with antiferromagnetic Ir-Mn layers”. *J. Appl. Phys.*, **81** (1997) 4004-4006. 45
- [Gar 02] F. Garcia, G. Casali, S. Auffret, B. Rodmacq, and B. Dieny. “Exchange bias in  $(\text{Pt}/\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1})_n/\text{FeMn}$  multilayers with perpendicular magnetic anisotropy”. *J. Appl. Phys.*, **91** (2002) 6905. 23, 40
- [Gar 03] F. Garcia, J. Sort, B. Rodmacq, S. Auffret, and B. Dieny. “Large anomalous enhancement of perpendicular exchange bias by introduction of a nonmagnetic spacer between the ferromagnetic and antiferromagnetic layers”. *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2003) 3537. 14, 23, 40, 43, 44, 45, 46
- [Gau 06] B. Gault, F. Vurpillot, A. Vella, M. Gilbert, A. Menand, D. Blavette, and B. Deco-nihout. “Design of a femtosecond laser assisted tomographic atom probe”. *Rev. Sci. Instrum.*, **77** (2006) 043705. 58
- [Geh 97] V. Gehanno, Y. Samson, A. Marty, B. Gilles, and A. Chamberod. “Magnetic susceptibility and magnetic domain configuration as a function of the layer thickness in epitaxial  $\text{FePd}(0\ 0\ 1)$  thin films ordered in the  $L1_0$  structure”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **172** (1997) 26. 86
- [Ges 00] J. Geshev. “Analytical solutions for exchange bias and coercivity in ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers”. *Phys. Rev. B*, **62** (2000) 5627. 32

- 
- [Geu 05] F. de Geuser. *Interprétation et traitement des données de sonde atomique tomographique : application à la précipitation dans les Al-Mg-Si*. PhD thesis, Université de Rouen, 2005. 56, 90
- [Gok 97] N. J. Gökemeijer, T. Ambrose, and C. L. Chien. “Long-Range Exchange Bias across a Spacer Layer”. *Phys. Rev. Lett.*, **79** (1997) 4270. 23
- [Has 89] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso. “Perpendicular magnetic anisotropy and magnetostriction of sputtered Co/Pd and Co/Pt multilayered films”. *J. Appl. Phys.*, **66** (1989) 4909-4916. 23, 40, 42, 43
- [Has 90] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso. “Film thickness dependence of magneto-optical and magnetic properties in Co/Pt and Co/Pd multilayers”. *J. Appl. Phys.*, **67** (1990) 4429. 85, 86
- [Hau 06] T. Hauet. *Décalage d'échange et magnétorésistances dans des bicouches à base de ferrimagnétiques amorphes couplés par échange*. PhD thesis, Université Henri Poincaré - Nancy I, 2006. 28
- [Heh 02] M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl. “Magnétorésistance géante et électronique de spin”. *Techniques de l'Ingénieur.*, (2002) E 2135. 36, 38
- [Hel 07] O. Hellwig, A. Berger, J. B. Kortright, and E. E. Fullerton. “Domain structure and magnetization reversal of antiferromagnetically coupled perpendicular anisotropy films”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **319** (2007) 13. 86
- [Her 91] B. D. Hermsmeier, R. F. C. Farrow, C. H. Lee, E. E. Marinero, C. J. Lin, R. F. Marks, and C. J. Chien. “Magnetic anisotropy and structural characterization of Co/Pt superlattices grown along selected orientations by molecular-beam epitaxy”. *J. Appl. Phys.*, **69** (1991) 5646. 41
- [Imr 75] Y. Imry and S.-k. Ma. “Random-Field Instability of the Ordered State of Continuous Symmetry”. *Phys. Rev. Lett.*, **35** (1975) 1399. 32
- [Joh 96] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. d. Broeder, and J. J. d. Vries. “Magnetic anisotropy in metallic multilayers”. *Rep. Prog. Phys.*, **59** (1996) 1409. 23, 40, 41, 42, 43
- [Jul 75] M. Julliere. “Tunneling between ferromagnetic films”. *Physics Letters A*, **54** (1975) 225. 37
- [Kan 08] J. Kanak, T. Stobiecki, and S. V. Dijken. “Influence of Interface Roughness, Film Texture, and Magnetic Anisotropy on Exchange Bias in  $[Pt/Co]_3/ IrMn$  and  $IrMn/[Co/Pt]_3$  Multilayers”. *IEEE Trans. Mag.*, **44** (2008) 238. 42

## Bibliographie

---

- [Kim 00] J.-V. Kim, R. L. Stamps, B. V. McGrath, and R. E. Camley. “Angular dependence and interfacial roughness in exchange-biased ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers”. *Phys. Rev. B*, **61** (2000) 8888. 32
- [Kim 05] J.-V. Kim and R. L. Stamps. “Hysteresis from antiferromagnet domain-wall processes in exchange-biased systems : Magnetic defects and thermal effects”. *Phys. Rev. B*, **71** (2005) 094405. 32
- [Kim 07] S. S. Kim, J. Y. Hwang, and J. R. Rhee. “Characteristics of perpendicular exchange bias in [Pt/Co]-IrMn multilayers”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **310** (2007) 2310-2312. 23, 40
- [Kim 96] J.-H. Kim and S.-C. Shin. “Interface roughness effects on the surface anisotropy in Co/Pt multilayer films”. *J. Appl. Phys.*, **80** (1996) 3121. 41
- [Kit 46] C. Kittel. “Theory of the Structure of Ferromagnetic Domains in Films and Small Particles”. *Phys. Rev.*, **70** (1946) 965. 85, 86
- [Kiw 01] M. Kiwi. “Exchange bias theory”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **234** (2001) 584. 28
- [Kiw 99] M. Kiwi, J. Mejía-Lóez, R. D. Portugal, and R. Ramírez. “Exchange bias systems with compensated interfaces”. *Appl. Phys. Lett.*, **75** (1999) 3995. 32
- [Koo 95] J. C. S. Kools. “Effect of energetic particle bombardment during sputter deposition on the properties of exchange-biased spin-valve multilayers”. *J. Appl. Phys.*, **77** (1995) 2993. 52
- [Koo 97] N. C. Koon. “Calculations of Exchange Bias in Thin Films with Ferromagnetic/Antiferromagnetic Interfaces”. *Phys. Rev. Lett.*, **78** (1997) 4865. 34
- [Kou 61] J. S. Kouvel. “The ferromagnetic-antiferromagnetic properties of copper-manganese and silver-manganese alloys”. *J. Phys. Chem. Sol.*, **21** (1961) 57. 30, 32
- [Lan 01] S. Landis. *Réseaux de plots magnétiques sub-microniques réalisés à partir de substrats pré-gravés*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble, 2001. 42
- [Lar 04] D. J. Larson, A. K. Petford-Long, Y. Q. Ma, and A. Cerezo. “Information storage materials : nanoscale characterisation by three-dimensional atom probe analysis”. *Acta Materialia*, **52** (2004) 2847. 59
- [Lar 06] D. J. Larson. “Atom probe characterization of nanomagnetic materials”. *Thin Solid Films*, **505** (2006) 16-21. 23
- [Lar 09] R. Lardé, L. Lechevallier, A. Zarefy, A. Bostel, J. Juraszek, J. M. Le Breton, B. Rodmacq, and B. Dieny. “Structural analysis of a (Pt/Co)<sub>3</sub>/IrMn multilayer : Inves-

- tigation of sub-nanometric layers by tomographic atom probe*". J. Appl. Phys., **105** (2009) 084307. 105
- [Lar 11] R. Lardé, J. Bran, m. Jean, and J. M. Le Breton. "Nanoscale characterization of powder materials by atom probe tomography". Powder Technology, **208** (2011) 260. 14, 56, 58
- [Lec 09] L. Lechevallier, A. Zarefy, R. Lardé, H. Chiron, J. M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq, and B. Dieny. "Structural analysis and magnetic properties of (Pt/Co)<sub>3</sub>/Pt/IrMn multilayers". Phys. Rev. B, **79** (2009) 174434. 125
- [Li 92] Z. G. Li and P. F. Carcia. "Microstructural dependence of magnetic properties of Pt/Co multilayer thin films". J. Appl. Phys., **71** (1992) 842. 41
- [Lin 94] X. Lin, A. S. Murthy, G. C. Hadjipanayis, C. Swann, and S. I. Shah. "Magnetic and structural properties of Fe-FeO bilayers". J. Appl. Phys., **76** (1994) 6543. 35
- [Liu 03a] Z. Y. Liu and S. Adenwalla. "Closely linear temperature dependence of exchange bias and coercivity in out-of-plane exchange-biased [Pt/Co]<sub>3</sub>/NiO(11) multilayer". J. Appl. Phys., **94** (2003) 1105. 23, 40
- [Liu 03b] Z. Y. Liu and S. Adenwalla. "Oscillatory Interlayer Exchange Coupling and Its Temperature Dependence in [Pt/Co]<sub>3</sub>/NiO/[Co/Pt]<sub>3</sub> Multilayers with Perpendicular Anisotropy". Phys. Rev. Lett., **91** (2003) 037207. 40
- [Lof 97] J. Löffler, H. Van Swygenhoven, W. Wagner, J. Meier, B. Doudin, and J. P. Ansermet. "Influence of grain size and oxidation on the magnetic properties of nanostructured Fe and Ni". NanoStruct. Mate., **9** (1997) 523. 35
- [Maa 01] S. Maat, K. Takano, S. S. P. Parkin, and E. E. Fullerton. "Perpendicular Exchange Bias of Co/Pt Multilayers". Phys. Rev. Lett., **87** (2001) 087202. 23, 40
- [Mal 87] A. P. Malozemoff. "Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces". Phys. Rev. B, **35** (1987) 3679. 32, 33
- [Mal 88] A. P. Malozemoff. "Mechanisms of exchange anisotropy (invited)". J. Appl. Phys., **63** (1988) 3874. 32
- [Mar 03] C. H. Marrows. "Three-dimensional exchange bias in (Co/Pd)<sub>N</sub>/FeMn". Phys. Rev. B, **68** (2003) 012405. 23, 40
- [Mat 03] V. Mathet, T. Devolder, C. Chappert, J. Ferré, S. Lemerle, L. Belliard, and G. Guentherodt. "Morphology and magnetic properties of Pt/Co/Pt sandwiches grown by argon sputter deposition". J. Magn. Magn. Mater., **260** (2003) 295. 41



## Bibliographie

---

- [Mau 87] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay. “Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate”. *J. Appl. Phys.*, **62** (1987) 3047. 30, 31, 32
- [Mei 56] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean. “New Magnetic Anisotropy”. *Phys. Rev.*, **102** (1956) 1413. 22, 26, 29, 32, 35
- [Mei 57] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean. “New Magnetic Anisotropy”. *Phys. Rev.*, **105** (1957) 904. 26, 29, 32
- [Mei 58] W. H. Meiklejohn. “Exchange Anisotropy in the Iron-Iron Oxide System”. *J. Appl. Phys.*, **29** (1958) 454. 35
- [Mei 62] W. H. Meiklejohn. “Exchange Anisotropy-A Review”. *J. Appl. Phys.*, **33** (1962) 1328. 29, 30, 87
- [Met 07] P. J. Metaxas, J. P. Jamet, A. Mougin, M. Cormier, J. Ferré, V. Baltz, B. Rodmacq, B. Dieny, and R. L. Stamps. “Creep and Flow Regimes of Magnetic Domain-Wall Motion in Ultrathin Pt/Co/Pt Films with Perpendicular Anisotropy”. *Phys. Rev. Lett.*, **99** (2007) 217208. 85, 126
- [Mil 96] M. K. Miller, A. Cerezo, M. G. Hetherington, and G. D. W. Smith. *Atom Probe Field Ion Microscopy*. Clarendon, Oxford, 1996. 98
- [Moo 95] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey. “Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions”. *Phys. Rev. Lett.*, **74** (1995) 3273. 37
- [Mor 05] J. Moritz, S. van Dijken, and J. M. D. Coey. “Magnetization reversal in perpendicular exchange-biased multilayers”. *Eur. Phys. J. B*, **45** (2005) 191. 84
- [Mul 68] E. W. Muller, J. A. Panitz, and S. B. McLane. “The Atom-Probe Field Ion Microscope”. *Rev. Sci. Instrum.*, **39** (1968) 83. 53
- [Nak 98] N. Nakajima, T. Koide, T. Shidara, H. Miyauchi, H. Fukutani, A. Fujimori, K. Iio, T. Katayama, M. Nývlt, and Y. Suzuki. “Perpendicular Magnetic Anisotropy Caused by Interfacial Hybridization via Enhanced Orbital Moment in Co/Pt Multilayers : Magnetic Circular X-Ray Dichroism Study”. *Phys. Rev. Lett.*, **81** (1998) 5229. 41
- [Nee 67] L. Néel. *Ann. Phys. (Paris)*, **2** (1967) 61. 30, 32
- [Nog 00] J. Nogués, C. Leighton, and I. K. Schuller. “Correlation between antiferromagnetic interface coupling and positive exchange bias”. *Phys. Rev. B*, **61** (2000) 1315. 27, 34

- 
- [Nog 05] J. Nogués, J. Sort, V. Langlais, V. Skumryev, S. Suriñach, J. S. Muñoz, and M. D. Baró. “*Exchange bias in nanostructures*”. *Phys. Rep.*, **422** (2005) 65-117. 28, 32, 33
- [Nog 96] J. Nogués, D. Lederman, T. J. Moran, and I. K. Schuller. “*Positive Exchange Bias in  $FeF_2 - Fe$  Bilayers*”. *Phys. Rev. Lett.*, **76** (1996) 4624. 27, 28, 34
- [Nog 99a] J. Nogués, T. J. Moran, D. Lederman, I. K. Schuller, and K. V. Rao. “*Role of interfacial structure on exchange-biased  $FeF_2/Fe$* ”. *Phys. Rev. B*, **59** (1999) 6984. 13, 27, 34, 40, 44
- [Nog 99b] J. Nogués and I. K. Schuller. “*Exchange bias*”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **192** (1999) 203. 26, 27, 28, 30, 36
- [Ott 03] F. Ott. “*simulation program, Laboratoire Léon Brillouin CEA/CNRS*”. [http://www-llb.cea.fr/prism/programs/simulreflec/SimulReflecHelp/SR\\_Manual.htm](http://www-llb.cea.fr/prism/programs/simulreflec/SimulReflecHelp/SR_Manual.htm), 2003. 74
- [Ott 06] F. Ott. “*simulation program, Laboratoire Léon Brillouin CEA/CNRS*”. <http://www-llb.cea.fr/prism/programs/simulreflec/simulreflec.html>, 2006. 66, 74
- [Pap 08] C. Papusoi, R. Sousa, J. Herault, I. L. Prejbeanu, and B. Dieny. “*Probing fast heating in magnetic tunnel junction structures with exchange bias*”. *New Journal of Physics*, **10** (2008) 103006. 45
- [Rad 07] F. Radu and H. Zabel. “*Exchange Bias Effect of Ferro/Antiferromagnetic Heterostructures*”. *STMP*, **227** (2007) 97. 13, 33
- [Roi 01] T. Roisnel and J. Rodriguez-Carvajal. “*WinPLOTR : a Windows tool for powder diffraction patterns analysis*”. *Mater. Sci. For.*, **378** (2001) 118. 81
- [Sch 68] C. Schlenker. “*Couplage ferro-antiferromagnétique et traînage magnétique dans des couches minces multiples  $Co/CoO$  et  $Ni/NiO$* ”. *Phys. Stat. Sol.*, **28** (1968) 507. 35
- [Sma 92] L. Smardz, U. Kobler, and W. Zinn. “*Oxidation kinetics of thin and ultrathin cobalt films*”. *J. Appl. Phys.*, **71** (1992) 5199. 35
- [Soe 94] S. Soeya, T. Imagawa, K. Mitsuoka, and S. Narishige. “*Distribution of blocking temperature in bilayered  $Ni_{81}Fe_{19}/NiO$  films*”. *J. Appl. Phys.*, **76** (1994) 5356. 45
- [Soe 97] S. Soeya, H. Hoshiya, K. Meguro, and H. Fukui. “*Enhanced unidirectional anisotropy of the  $Co_{90}Fe_{10}/CrMnPt$  system by the  $NiO$  capping layer*”. *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 3424. 45

## Bibliographie

---

- [Sor 04a] J. Sort, B. Dieny, M. Fraune, C. Koenig, F. Lunnebach, B. Beschoten, and G. Guntherodt. “*Perpendicular exchange bias in antiferromagnetic-ferromagnetic nanostructures*”. *Appl. Phys. Lett.*, **84** (2004) 3696. 40
- [Sor 04b] J. Sort, F. Garcia, B. Rodmacq, S. Auffret, and B. Dieny. “*Enhancement of exchange bias through a non-magnetic spacer*”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **272-276** (2004) 355. 43
- [Sor 05a] J. Sort, V. Baltz, F. Garcia, B. Rodmacq, and B. Dieny. “*Tailoring perpendicular exchange bias in [Pt/Co]-IrMn multilayers*”. *Phys. Rev. B*, **71** (2005) 054411. 42, 43, 46, 70, 71, 84, 125
- [Sor 05b] J. Sort, B. Dieny, and J. Nogués. “*Exchange bias in antiferromagnetic-ferromagnetic-antiferromagnetic structures with out-of-plane magnetization*”. *Phys. Rev. B*, **72** (2005) 104412. 70, 71, 84
- [Sta 00] R. L. Stamps. “*Mechanisms for exchange bias*”. *J. Phys. D*, **33** (2000) R247. 28
- [Sti 99] M. D. Stiles and R. D. McMichael. “*Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers*”. *Phys. Rev. B*, **59** (1999) 3722. 28
- [Tak 97] K. Takano, R. H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas. “*Interfacial Uncompensated Antiferromagnetic Spins : Role in Unidirectional Anisotropy in Polycrystalline  $Ni_{81}Fe_{19}/CoO$  Bilayers*”. *Phys. Rev. Lett.*, **79** (1997) 1130. 33
- [Teh 03] S. Tehrani, J. Slaughter, M. Deherrera, B. Engel, N. Rizzo, J. Slater, M. Durlam, R. Dave, J. Janesky, B. Butcher, K. Smith, and G. Grynkewich. “*Magneto-resistive random access memory using magnetic tunnel junctions.*”. *Proc. IEEE*, **91** (2003) 703. 36
- [Tok 90] T. Tokunaga, M. Taguchi, T. Fukami, Y. Nakaki, and K. Tsutsumi. “*Study of interface wall energy in exchange-coupled double-layer film*”. *J. Appl. Phys.*, **67** (1990) 4417. 35
- [Tom 99] I. Tomeno, H. N. Fuke, H. Iwasaki, M. Sahashi, and Y. Tsunoda. “*Magnetic neutron scattering study of ordered  $Mn_3Ir$* ”. *J. Appl. Phys.*, **86** (1999) 3853-3856. 14, 45, 46
- [Vur 00] F. Vurpillot, A. Bostel, and D. Blavette. “*Trajectory overlaps and local magnification in three-dimensional atom probe*”. *Appl. Phys. Lett.*, **76** (2000) 3127. 101
- [Vur 01] F. Vurpillot. *Etude de la fonction de transfert pointe-image de la sonde atomique tomographique*. PhD thesis, Université de Rouen, 2001. 90, 99
- [Vur 99] F. Vurpillot, A. Bostel, A. Menand, and D. Blavette. “*Trajectories of field emitted ions in 3D atom-probe*”. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **6** (1999) 217. 99

- 
- [Zaa 95] P. J. van der Zaag, R. M. Wolf, A. R. Ball, C. Bordel, L. F. Feiner, and R. Jungblut. “A study of the magnitude of exchange biasing in  $[111]$   $Fe_3O_4/CoO$  bilayers”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **148** (1995) 346. 35, 45
- [Zar 10] A. Zarefy, L. Lechevallier, R. Lardé, H. Chiron, J. M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq, and B. Dieny. “Influence of Co layer thickness on the structural and magnetic properties of  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  multilayers ”. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **43** (2010) 215004. 70, 85



# Résumé

## Résumé

Ce travail de thèse est consacré à la corrélation entre propriétés structurales à l'échelle atomique et propriétés magnétiques de multicouches  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  à anisotropie d'échange perpendiculaire. Ces multicouches sont utilisées dans le domaine de l'électronique de spin. Une attention particulière a été portée à la caractérisation nanostructurale de l'interface  $Co/IrMn$ , cette interface jouant un rôle prédominant dans le phénomène d'anisotropie d'échange, caractérisée par le champ d'échange  $H_E$ . L'étude structurale, réalisée principalement en sonde atomique tomographique a permis de révéler la structure des multicouches étudiées dont certaines couches sont d'épaisseur sub-nanométrique. Les résultats des mesures magnétiques ont montré que l'insertion d'une couche mince (spacer) de  $Pt$  à l'interface  $Co/IrMn$  augmente les valeurs de  $H_E$  pour la multicouche dont l'épaisseur des couches de  $Co$  est  $t_{Co}=0,4$  nm, mais diminue  $H_E$  lorsque  $t_{Co}=0,6$  nm. Les analyses nanostructurales montrent qu'en l'absence du spacer et pour  $t_{Co}=0,4$  nm, les atomes d' $Ir$  et de  $Mn$  diffusent dans toute l'épaisseur de la couche de  $Co$  sur laquelle repose la couche  $IrMn$  alors que pour  $t_{Co}=0,6$  nm la diffusion de ces atomes est beaucoup plus réduite. Quelle que soit l'épaisseur de la couche de  $Co$ , la présence du spacer réduit très fortement la diffusion d' $Ir$  et de  $Mn$ , montrant ainsi que le spacer agit comme une barrière de diffusion. Pour  $t_{Co}=0,4$  nm, l'ajout du spacer, en limitant très fortement l'interdiffusion à l'interface entraîne l'augmentation de  $H_E$ . Pour  $t_{Co}=0,6$  nm, la diffusion étant limitée, l'ajout d'un spacer entraîne une diminution de  $H_E$  en raison de l'éloignement des spins de  $Co$  et  $Mn$ .

*Mots-clés* : Anisotropie d'échange perpendiculaire, Sonde atomique tomographique, Couplage d'échange, Multicouches magnétiques, Interface, Diffusion.

## Abstract

This thesis is devoted to the correlation of the structural properties at the atomic scale with the magnetic properties of  $(Pt/Co_{tCo})_3/Pt_{tPt}/IrMn$  multilayers with perpendicular exchange bias. Such multilayers are used in spintronics. A particular attention has been devoted to the structural characterization of the  $Co/IrMn$  interface. This interface plays a determining role in the exchange bias phenomenon, characterized by the exchange bias field  $H_E$ . Investigation at the nanostructural scale has been carried out using atom probe tomography. Magnetic measurements were performed with a SQUID magnetometer. The results of magnetic measurements show that the insertion of a  $Pt$  spacer at the  $Co/IrMn$  interface increases  $H_E$  for the multilayer in which the thickness of the  $Co$  layers ( $t_{Co}$ ) is 0.4 nm, but decreases  $H_E$  for the multilayer with  $t_{Co}=0.6$  nm. Nanostructural analyses showed that in the absence of the spacer and for  $t_{Co}=0.4$  nm,  $Ir$  and  $Mn$  diffuse within the whole  $Co$  layer onto which the  $IrMn$  layer was deposited, while for  $t_{Co}=0.6$  nm the  $Ir$  and  $Mn$  diffusion is much more reduced. On the other hand, whatever the thickness of the  $Co$  layer, the spacer reduces the  $Ir$  and  $Mn$  diffusion, thus acting as a diffusion barrier. Consequently, for multilayers with  $t_{Co}=0.4$  nm, the spacer limits the interdiffusion at the  $Co/IrMn$  interface, leading to an increase of  $H_E$ . The  $Ir$  and  $Mn$  diffusion in the  $Co$  layer being limited for the multilayer with  $t_{Co}=0.6$  nm, the spacer moves away the  $Co$  spins from the  $Mn$  spins, leading to a decrease of  $H_E$ .

*Keywords* : Exchange bias, Magnetic anisotropy, Atom probe tomography, Magnetic multilayers, Interface, Diffusion.