



**HAL**  
open science

# Etude de couches ferromagnetiques ultra-minces par microscopie à balayage de centre NV

Thomas Hingant

► **To cite this version:**

Thomas Hingant. Etude de couches ferromagnetiques ultra-minces par microscopie à balayage de centre NV. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Saclay (COMUE), 2015. Français. NNT : 2015SACLN028 . tel-01254326

**HAL Id: tel-01254326**

**<https://theses.hal.science/tel-01254326>**

Submitted on 12 Jan 2016

**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.

NNT : 2015SACLN028

THESE DE DOCTORAT  
DE  
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY  
PREPAREE A  
L'ECOLE NORMALE SUPERIEURE DE CACHAN

ECOLE DOCTORALE N° 572  
Ondes et Matière

Spécialité de doctorat : Nanophysique

Par

**M. Thomas Hingant**

Etude de couches ferromagnétiques ultra-minces par  
microscopie à balayage de centre NV

**Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 17 décembre 2015 :**

**Composition du Jury :**

M. VIRET Michel	Directeur de recherche, CEA Saclay	Président
Mme BARTHELEMY Agnès	Professeure des Universités, Unité mixte CNRS/THALES	Rapporteuse
M. VOGEL Jan	Directeur de recherche, Institut Néel	Rapporteur
M. KLEIN Olivier	Directeur de recherche, CEA SPINTEC	Examineur
M. ROCH Jean-François	Professeur des Universités, ENS Cachan - LAC	Directeur de thèse
M. JACQUES Vincent	Chercheur CNRS, Laboratoire Charles Coulomb	Co-directeur de thèse

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>10</b>
<b>1 Imager les parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces</b>	<b>14</b>
1.1 Parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces à anisotropie perpendiculaire	15
1.1.1 Éléments de micromagnétisme . . . . .	15
1.1.2 Domaines magnétiques et parois . . . . .	19
1.1.3 Contexte applicatif . . . . .	19
1.1.4 Films ferromagnétiques ultra-minces et anisotropie perpendiculaire . . . . .	21
1.1.5 Structure des parois dans les films ultra-minces . . . . .	22
1.1.6 Énergie d'une paroi . . . . .	25
1.2 Imagerie des parois de domaine dans les couches ultra-minces ferromagnétiques . . . . .	26
1.2.1 Techniques d'imagerie de l'aimantation par interaction avec des « particules-sondes » . . . . .	27
1.2.1.1 Microscopie Kerr et autres techniques magnéto-optiques . . . . .	27
1.2.1.2 Dichroïsme magnétique circulaire des rayons X . . . . .	28
1.2.1.3 Microscopie électronique à balayage avec analyse de la polarisation (SEMPA ou spin-SEM) . . . . .	31
1.2.1.4 Microscopie par électrons de basse énergie polarisés en spin (SPLEEM) . . . . .	31
1.2.1.5 Techniques de microscopies électroniques à transmission . . . . .	32
1.2.1.6 Microscopie magnétique par électrons balistiques (BEMM) . . . . .	34
1.2.1.7 Microscopie tunnel à balayage polarisée en spin (SP-STM) . . . . .	35
1.2.2 Imagerie du champ magnétique de fuite de la paroi . . . . .	36
1.2.2.1 Décorer la surface - méthode de Bitter . . . . .	36
1.2.2.2 Techniques de mesure de flux magnétique à balayage . . . . .	37
1.2.2.3 Microscopie à force magnétique (MFM) . . . . .	39
1.2.3 Bilan . . . . .	40
1.3 Conclusion . . . . .	41

<b>2</b>	<b>Imagerie d'une paroi de domaine avec un microscope à centre NV</b>	<b>43</b>
2.1	Centre NV du diamant . . . . .	44
2.1.1	Centres colorés du diamant et propriétés optiques du centre NV . . . . .	44
2.1.2	Résonance magnétique détectée optiquement . . . . .	46
2.1.3	Application à la magnéto-métrie DC . . . . .	48
2.2	Microscope à balayage de centre NV . . . . .	51
2.2.1	Dispositif expérimental . . . . .	52
2.2.2	Fonctionnalisation du microscope . . . . .	55
2.2.3	Caractérisation de la sonde de champ magnétique . . . . .	56
2.2.4	Résolution spatiale de l'instrument . . . . .	59
2.3	Imagerie d'une paroi de domaine par microscopie NV . . . . .	61
2.3.1	Échantillon . . . . .	61
2.3.2	Cartographie complète de champ . . . . .	63
2.3.3	Mode d'imagerie rapide : « iso-B » . . . . .	65
2.4	Sauts de Barkhausen thermiquement activés . . . . .	67
2.4.1	Observation de sauts de paroi . . . . .	67
2.4.2	Influence du laser . . . . .	69
2.4.3	Modèle . . . . .	73
2.4.4	Exploitation pour cartographier les défauts . . . . .	78
2.5	Conclusion . . . . .	80
<b>3</b>	<b>Mesure locale de la densité de moments magnétiques pour l'étude d'une nano-structure irradiée</b>	<b>81</b>
3.1	Mesurer la densité de moments magnétiques à des échelles nanométriques . . . . .	82
3.1.1	Limitations des techniques conventionnelles . . . . .	82
3.1.2	Mesure de $M_s$ par microscopie NV . . . . .	83
3.1.3	Preuve de principe . . . . .	85
3.1.4	Évaluation des incertitudes . . . . .	88
3.1.5	Résolution spatiale et hauteur de vol . . . . .	92
3.2	Application de la méthode à l'étude d'une nano-structure irradiée par des ions $\text{He}^+$ . . . . .	94
3.2.1	Échantillon d'étude . . . . .	95
3.2.2	Mesure de la densité de moments magnétiques de la piste irradiée localement . . . . .	97
3.2.3	Renversement de la région irradiée . . . . .	98
3.3	Conclusion . . . . .	100
<b>4</b>	<b>Nature des parois de domaine dans les films ultra-minces</b>	<b>101</b>
4.1	Contexte . . . . .	102
4.1.1	Dynamique des parois sous l'action d'un courant - Transfert de spin . . . . .	102



4.1.2	Mesures de vitesses extrêmement grandes dans Pt Co AlO <sub>x</sub> . . . . .	105
4.1.3	Interaction de Dzyaloshinskii-Moriya . . . . .	107
4.1.4	Techniques de mesure de l'interaction DM . . . . .	110
4.1.4.1	Mesure de l'interaction DM par des études dynamiques . . . . .	110
4.1.4.2	Mesure de l'interaction DM par diffusion Brillouin de la lumière . . . . .	112
4.2	Détermination de la nature des parois par une mesure de champ de fuite . . . . .	114
4.2.1	Principe : différence de champ de fuite entre parois de Bloch et de Néel . . . . .	114
4.2.2	Précision de la mesure . . . . .	117
4.2.3	Preuve de principe de la méthode . . . . .	119
4.3	Preuve de la présence de l'interaction DM dans les couches ultra-minces . . . . .	122
4.3.1	Parois de Néel dans Pt Co(0,6) AlO <sub>x</sub> . . . . .	122
4.3.2	Remplacement du substrat : X CoFeB(1) MgO . . . . .	125
4.3.2.1	TaN CoFeB(1) MgO . . . . .	125
4.3.2.2	W CoFeB(1) MgO . . . . .	128
4.4	Conclusion . . . . .	130
<b>Conclusion et perspectives</b>		<b>132</b>
<b>A Calculs de champ de fuite d'une structure magnétique et simulation de cartographies obtenues avec le centre NV</b>		<b>135</b>
A.1	Approche Coulombienne de la magnétostatique . . . . .	135
A.2	Champ au bord d'une couche magnétique à aimantation perpendiculaire . . . . .	137
A.3	Simulations d'une structure quelconque . . . . .	139
A.3.1	Champ de fuite pour une cellule élémentaire . . . . .	139
A.3.2	Calcul du champ total . . . . .	140
A.3.3	Application de la réponse du centre NV . . . . .	141
A.3.4	Exemple d'utilisation pour le fit d'un profil <i>iso-B</i> . . . . .	142
<b>B Détails sur la détermination de la nature de paroi</b>		<b>145</b>
B.1	Erreurs sur les prédictions de champ . . . . .	145
B.2	Comparaison entre simulation micromagnétique et profil analytique pour l'aimantation . . . . .	150



# Remerciements

Mon nom qui trône, solitaire, juste au-dessus du titre du manuscrit, rend bien mal justice à tous ceux qui m'ont accompagné au cours de ces trois années – et même un peu plus. À tous, qui ont ainsi, à leur façon, contribué à la réalisation de ce travail de thèse, vont ces remerciements, bien maigres en regard de leur apport.

En premier lieu, je souhaite remercier Vincent, qui a été un encadrant d'une rare qualité. Par ton attention et ton suivi quasi-quotidien, tu te préoccupes de l'épanouissement de tes étudiants, tant scientifiquement qu'humainement, et cela contribue beaucoup, je l'imagine, au plaisir que l'on a à travailler avec toi. Tandis que les discussions régulières avec toi apportent toujours de bonnes idées et aiguillent les recherches dans des directions fructueuses, tu sais aussi laisser la liberté d'explorer. J'ai ainsi beaucoup appris à ton contact, mais plutôt que de couvrir cette page des éloges que tu mérites, je te souhaiterai simplement de réussir à Montpellier ce que tu as réussi à Cachan, ce dont je ne doute pas une seconde.

Bien entendu, mes remerciements vont également à Jean-François, qui a été mon directeur de thèse, et que j'ai eu en plus le plaisir de côtoyer lors du cours d'Optique à l'ENS de Cachan. Par ton enthousiasme scientifique aussi bien que par tes qualités humaines, tu participes beaucoup au bon fonctionnement du groupe et du laboratoire, et c'est avec joie que je reste encore quelques temps pour travailler dans ton équipe.

J'insiste encore une fois sur le fait que le travail présenté dans ce manuscrit est le résultat d'un effort commun, et l'ensemble de cette réalisation doit principalement à Jean-Philippe et à Loïc. Merci donc, à Loïc, qui a monté toute l'expérience et qui s'est éclipsé à mon arrivée. Je suis très heureux de retrouver ton humour, maintenant teinté d'une couleur suisse-allemande, autant que ta curiosité infinie, qui te vaut de t'intéresser aussi bien à la physique que, par exemple, à l'ensemble du patrimoine cinématographique de l'humanité. Merci bien sûr à Jean-Philippe, qui a été mon mentor autant que mon collègue. J'ai travaillé deux ans à tes côtés, d'abord sur les vortex ferromagnétiques et sur la relaxométrie du centre NV, puis sur les parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces, et aborder chaque sujet avec toi a été un immense plaisir, autant qu'une source d'enrichissement inépuisable. Tu es toujours partant, plein d'idées et d'une force de travail impressionnante, et j'espère que ces qualités t'amèneront aussi loin que tu le désires. Je te souhaite plein de bonheur au pays des

kangourous et de la viande de crocodile séché et je te dis encore merci.

Au milieu de la deuxième année de ma thèse est arrivé Luis, en post-doctorat, avec qui j'ai travaillé principalement sur la réalisation d'une expérience à basse température. J'étais très content de partager la salle d'expérience avec toi, et ton tempérament discret ne fait pas moins de toi un collègue avec lequel j'ai passé de très bons moments, entre optique et remplissage de cryostat. Enfin, Isabell a commencé sa thèse pendant ma dernière année. Comme celle de Luis, ta venue dans le groupe a été une grande chance pour nous. Tu fais montre d'autant de qualités que Jean-Philippe, que tu as remplacé, dynamique, toujours souriante et motivée. J'ai énormément apprécié travailler avec toi, et je vous fais confiance, à Luis et à toi, pour faire de très jolies découvertes à Montpellier avec le magnétomètre.

Avoir une expérience, c'est très amusant, mais ça l'est plus encore lorsque l'on sait pour quoi l'utiliser. Ainsi je souhaite remercier très vivement ceux qui nous ont ouvert la porte du magnétisme, d'abord André Thiaville et Stanislas Rohart, et puis Joo-Von Kim, Thibault Devolder, Dafiné Ravelosona, Liza Herrera-Diez, Gilles Gaudin, Mihai Miron, Vincent Cross, Vincent Jeudy, Manuel Bibes, Stéphane Fusil, et bien sûr, Karin García, sans qui nous n'aurions jamais eu de si beaux échantillons. Il y a bien d'autres personnes que j'oublie, comme Rémy, Aleš ou Constance, ce pourquoi je souhaite remercier généralement toutes les personnes issues de la communauté du magnétisme que j'ai eu le plaisir de rencontrer. Patrick Maletinsky nous a, quant à lui, ouvert plusieurs fois les portes de son laboratoire, pour une collaboration très enrichissante. Il a été très plaisant de travailler avec l'équipe accueillante de l'université de Bâle, et j'en remercie tous ses membres.

Bien sûr, il y a également tous ceux qui sont passés du côté obscur de la salle de manip'. Anaïs, source infinie de chocolat et qui m'a livré les secrets ancestraux du kouign-amann, Marie-Pierre avec sa musique, ses éternelles converses trouées et sa bonne humeur, et Clément, toujours prêt à organiser n'importe quoi. Ludo, ses gâteaux et sa presse people, Pierre, mon alter-ego des TDs d'optique et laser, qui a voulu me traîner à la piscine, Margarita, qui m'a appris plein de mots russes et qui m'a même apporté un koulitch, mais aussi Géraud et Zoé, Simon et ses souris, Soroush danseur infatigable, Sandoko, Nitin, Trang, Em Trang, Minh, Qinggele et Xiao, mes très chers professeurs de chinois, Gabriel, David, Khaoula, Stefan, Léonard, Nina, petit Pierre, Michaël, Loïc le jeune, et Timothée, enfin, qui reprend le flambeau sur l'expérience à froid, ce qui me plaît beaucoup.

J'ai par ailleurs été rattaché successivement à deux laboratoires, le LPQM à Cachan et le LAC à Orsay, et je tiens à remercier l'ensemble des membres de ces laboratoires qui m'ont accueilli, et tout particulièrement les services administratifs et techniques. Je souhaite aussi remercier les membres du département de physique de l'ENS de Cachan, où j'ai sévi contre trois générations d'étudiants. Mes remerciements vont spécialement à Zina, Christian, Luc, Emmanuelle, Hervé, Henri, Patrice, Pascal, Colin, Monique, Sandra, Magali, Yasmine, Fabien, Jean-Sébastien, à Isabelle, Jean, Jean-Baptiste, François et Diep avec qui j'ai eu le plaisir d'enseigner, mais aussi à Thierry, Julian, Gaëlle, Sakina, Mélanie, Aliou, Benjamin, Thierry, Fabien, Fabienne, Citlali, Hiba, Silvia, Isabelle, Mélanie, Jasleen, Syamsundar, Marie-Aude, Tarek, Colette, Sham, Rachid, et à tous les autres qui ont leur place ici mais que les jeux de ma mémoire m'ont fait omettre.

Enfin, ces trois années n'auraient pas eu la même couleur sans la mauvaise foi et la bonne humeur de Juliette, Aurélien et Maxim, sans les soirées passées les yeux rougis devant l'écran en compagnie de Raphaël et Alizée, ou de Raphaël, de Mathieu, sans l'amitié de Sophie, Erwann, Émilien, Clément, Adrien, Alice, Pauline, et sans les coups de crayons de ceux qui fréquentaient la grande Chaumière. Merci à Fitz, aussi, qui m'a suivi de près pendant la quasi-totalité de ces trois ans.

Pour finir cet inventaire à la Prévert – sans le style de Prévert et sans raton-laveur – je tiens à remercier infiniment Soobin, qui m'a apporté tellement tout au long de ces trois ans. Pour m'avoir suivi, soutenu, et supporté toutes ces années, et avoir fait de moi ce que je suis, merci bien sûr à Brigitte, Bénédicte, N. et Z., mes parents, mais aussi à Laurent et à Stan, et aux nouveaux venus, Timothée et Coline. Merci en outre à tous ceux qui ont relu ce manuscrit, et qui ont essayé d'en éradiquer les fautes.

Je remercie enfin chaleureusement Agnès Barthélémy et Jan Vogel de m'avoir fait l'honneur de rapporter mon travail, Olivier Klein, qui a participé en tant qu'examinateur à mon jury de thèse, et enfin Michel Viret, qui a accepté d'en être le président.



# Introduction

Avec l'avènement d'Internet et des mégadonnées (*big data* en anglais), la demande en capacité de stockage est toujours plus grande. Les insuffisances des anciennes architectures de stockage ou de traitement des données, comme la forte consommation énergétique des disques durs, se font ainsi ressentir de façon plus marquée [1]. Afin de pallier ces manques, de nombreuses pistes sont explorées, pour stocker les données de manière plus efficace, mais également pour réaliser les opérations logiques directement à l'intérieur des architectures de stockage [2, 3].

La plupart des nouvelles architectures conservent l'encodage de l'information binaire dans l'orientation de domaines magnétiques. Ce schéma, déjà utilisé dans les disques durs, s'avère en effet extrêmement robuste en raison de la rémanence des structures magnétiques. C'est par exemple le cas des très prometteuses mémoires MRAM (Magnetic Random Access Memory) ou des architectures reposant sur le déplacement de parois de domaines magnétiques (*DW logic*) [3, 4]. Une paroi de domaine correspond à la région de transition entre deux bits d'information magnétique. En conséquence, la compréhension et la manipulation de cet objet sont la clé de très nombreuses applications, comme la *racetrack memory*, proposée par Parkin et collaborateurs en 2008 [5] [cf. figure 1].

Le développement de systèmes dont les potentialités dépassent celles des disques durs repose d'une part sur l'utilisation de couches ferromagnétiques ultra-minces, où le matériau magnétique ne représente que quelques épaisseurs atomiques. Ces matériaux présentent une nouvelle physique très riche, où les interactions intervenant aux interfaces peuvent prédominer sur les interactions de volume. En particulier, aux faibles épaisseurs, on peut voir apparaître une forte anisotropie magnétique perpendiculaire au plan des couches, ce qui est avantageux en termes de stabilité. D'autre part, pour augmenter les volumes d'information stockés, il est indispensable de réaliser des systèmes où les domaines magnétiques sont les plus petits possibles, de dimensions sub-micrométriques.

Le pendant de ces réductions des dimensions des systèmes magnétiques est la complexification de leur étude. À mesure que les épaisseurs des couches magnétiques sont réduites, il devient plus difficile de mesurer les grandeurs caractérisant un échantillon, comme l'aimantation à saturation ou la constante d'échange.

En outre, la miniaturisation des domaines magnétiques sous-tend la capacité à produire des couches magné-

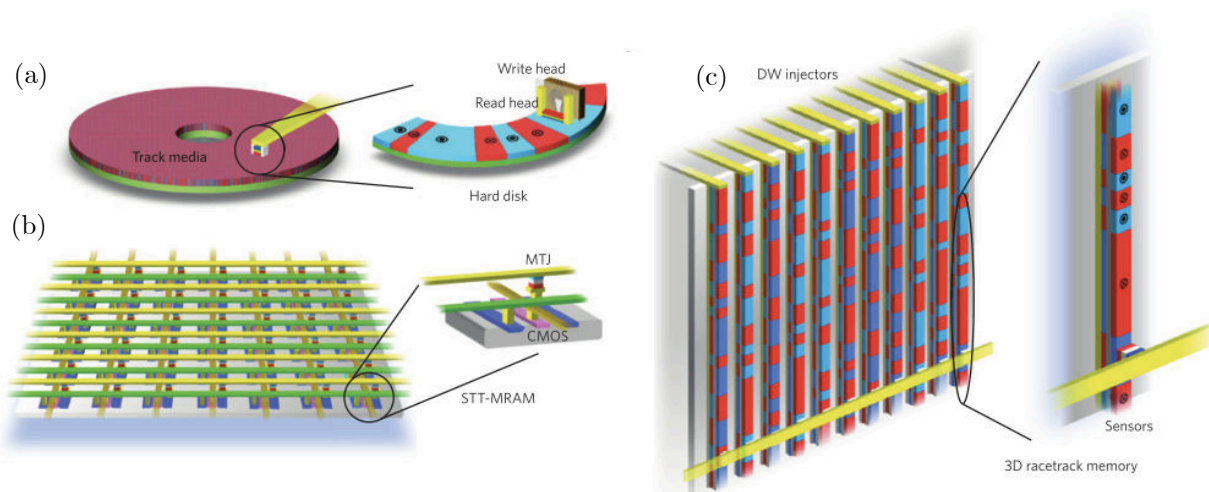


FIGURE 1 : Différentes architectures pour le stockage magnétique de l'information. Image tirée de l'article de S. Parkin et al. [4] (a) et (b) Disque dur et MRAM. (c) Racetrack memory. Dans tous les cas, l'orientation des domaines magnétiques (en rouge et bleu) code l'information. Les régions séparant les domaines sont appelées des parois de domaines. La différence entre les architectures se fait dans le mode d'accès aux données. Dans un disque dur, un mouvement mécanique déplace les données sous la tête de lecture/écriture. Dans une MRAM, les données sont fixes, et disposent chacune d'une tête de lecture/écriture. Dans une racetrack, les domaines sont mobiles, comme dans un disque dur, mais sont déplacés sous l'effet d'un courant électrique.

tiques sans défauts. En effet, les parois tendent à « s'accrocher » sur les imperfections du matériau. Il est donc important d'évaluer l'impact des défauts sur les parois aux échelles nanométriques, ceci afin de pouvoir limiter cet impact. L'élimination des défauts des matériaux représente une étape primordiale avant de pouvoir disposer d'architectures viables reposant sur le déplacement des parois de domaine [3].

Un autre point clé pour le développement de systèmes efficaces s'appuyant sur le déplacement des parois, est de pouvoir propager celles-ci rapidement. Ceci suppose la compréhension des mécanismes conduisant à cette propagation. En particulier, la structure de l'aimantation à l'intérieur des parois de domaines a un impact très fort sur l'efficacité de ces différents mécanismes [6–9]. Dans les couches ultra-minces, il était communément admis [10], jusqu'en 2011, que les parois consistaient en un retournement hélicoïdal de l'aimantation, appelé paroi de Bloch. Cependant, l'interprétation de mesures de déplacements extrêmement rapides des parois de domaines dans une couche de Pt|Co|AlO<sub>x</sub>, sous l'action d'un courant électrique, a soulevé un débat important [11–13]. La nature des parois a notamment été remise en question, et il a été proposé [10] qu'une interaction d'interface, l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya pouvait forcer un retournement cycloïdal de l'aimantation, appelé paroi de Néel. L'impossibilité de trancher ce débat résidait dans l'incapacité à déterminer expérimentalement la structure des parois.

L'étude des parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces soulève ainsi plusieurs questions importantes. Avant tout, se pose la question de l'imagerie des parois de domaines à l'échelle nanométrique.



Ensuite, vient la question de la caractérisation des couches ultra-minces. Ce point comprend l'étude des caractéristiques magnétiques de la couche, aussi bien que l'impact des imperfections du matériau sur les parois de domaines magnétiques. Enfin, la dernière question porte sur la possibilité de déterminer la structure interne des parois de domaines.

Dans ce manuscrit, nous nous proposons d'apporter un éclairage sur chacune de ces problématiques. Nous utiliserons pour cela une technique récemment développée dans notre laboratoire, la microscopie à balayage de centre NV. Cette technique permet de faire l'image du champ magnétique, et repose sur la lecture quantitative du déplacement Zeeman du spin électronique d'un centre azote-lacune (NV) du diamant [14].

## Plan du manuscrit

Le chapitre 1 sera consacré à la présentation du cadre dans lequel nous allons évoluer au long des chapitres suivants. Il se décompose en deux parties. La première visera à introduire les éléments théoriques dont nous nous servirons dans ce manuscrit, ainsi qu'à présenter notre principal objet d'étude : la paroi de domaines magnétiques dans les couches ultra-minces. Nous insisterons notamment sur l'intérêt applicatif de cet objet.

Après cette introduction, nous brosserons brièvement un état de l'art des différentes techniques d'imagerie pour le nano-magnétisme. Celles-ci seront présentées sous l'angle de l'imagerie des parois de domaines dans les films ferromagnétiques ultra-minces, et des contraintes que cela impose. Nous soulignerons en particulier le besoin de pallier l'aspect perturbateur de la technique couramment utilisée qu'est la microscopie à force magnétique (MFM).

Dans le chapitre 2, nous présenterons en première partie le microscope à balayage de centre NV, développé dans notre laboratoire en 2011 pour l'imagerie magnétique. Après une rapide présentation du principe de la technique, nous détaillerons le dispositif expérimental. La seconde partie du chapitre aura pour objet la démonstration de la capacité de la technique à imager les parois de domaines dans les films ultra-minces, d'une manière quantitative et résolue spatialement. Enfin, nous utiliserons le microscope à balayage de centre NV pour étudier la physique des sauts de Barkhausen thermiquement activés entre différents sites d'ancrage de la paroi.

Le chapitre 3 traitera de l'étude des effets d'une irradiation avec des ions hélium sur une portion de couche ferromagnétique ultra-mince. L'irradiation peut notamment causer une diminution du moment magnétique du matériau. Nous présenterons tout d'abord une méthode permettant de mesurer le moment magnétique des couches ultra-minces avec une résolution spatiale sub-micrométrique, ce qui constitue un gain de huit ordres de grandeur par rapport aux techniques conventionnelles de magnétométrie. Dans un second temps, nous utiliserons cette méthode pour étudier une couche magnétique irradiée localement. Nous commencerons par mesurer l'impact de l'irradiation sur le moment magnétique global, puis nous retournerons spécifiquement l'aimantation de la région irradiée afin d'étudier l'allure des parois du domaine ainsi créé.

Enfin, le chapitre 4 sera dédié à l'étude de la structure interne des parois de domaines magnétiques dans les couches ultra-minces. Dans la première partie du chapitre, nous développerons le contexte et les enjeux qui ont motivé cette étude. En particulier, nous présenterons les mécanismes de propagation des parois de domaines ma-

gnétiques sous l'action d'un courant électrique. Nous introduirons alors l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya aux interfaces, dont la présence modifie la structure interne des parois de domaines, et conséquemment leur dynamique. Dans la suite du chapitre, nous détaillerons la méthode que nous avons mise en œuvre afin de déterminer la structure des parois. Enfin, nous étudierons des couches magnétiques ultra-minces de compositions différentes et montrerons l'influence du substrat utilisé sur l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya. La compréhension de l'origine de cette interaction est essentielle, car sa présence rend possible l'existence de nombreux nouveaux objets, tels que les skyrmions magnétiques, et ouvre la voie vers autant de possibilités d'applications.

# Imager les parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces

## Sommaire

---

<b>1.1 Parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces à anisotropie perpendiculaire . . . . .</b>	<b>15</b>
1.1.1 Éléments de micromagnétisme . . . . .	15
1.1.2 Domaines magnétiques et parois . . . . .	19
1.1.3 Contexte applicatif . . . . .	19
1.1.4 Films ferromagnétiques ultra-minces et anisotropie perpendiculaire . . . . .	21
1.1.5 Structure des parois dans les films ultra-minces . . . . .	22
1.1.6 Énergie d'une paroi . . . . .	25
<b>1.2 Imagerie des parois de domaine dans les couches ultra-minces ferromagnétiques</b>	<b>26</b>
1.2.1 Techniques d'imagerie de l'aimantation par interaction avec des « particules-sondes » .	27
1.2.2 Imagerie du champ magnétique de fuite de la paroi . . . . .	36
1.2.3 Bilan . . . . .	40
<b>1.3 Conclusion . . . . .</b>	<b>41</b>

---

Ce chapitre vise à l'introduction de l'objet d'étude de ce manuscrit, à savoir la paroi de domaine ferromagnétique dans les couches ultra-minces à anisotropie perpendiculaire. Il se compose de deux parties. La première (§1.1) consistera à exposer le cadre général dans lequel s'inscrit ce travail de thèse. Nous introduirons les parois de domaines magnétiques ainsi que quelques propriétés importante de ces objets, à la lumière des enjeux technologiques qui y sont liés. La seconde partie (§1.2) du chapitre sera consacrée à la présentation des différentes techniques d'imagerie permettant d'étudier directement les parois de domaines ferromagnétiques dans des films ultra-minces.

## 1.1 Parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces à anisotropie perpendiculaire

### 1.1.1 Éléments de micromagnétisme

Nous commencerons par décrire brièvement le cadre théorique dans lequel nous allons évoluer tout au long de ce manuscrit pour la description du magnétisme. Notre ambition n'est pas de détailler les différentes approches théoriques servant à l'étude du magnétisme [15–17], mais simplement de présenter les objets et les grandeurs que nous étudierons dans cette thèse.

En particulier, nous nous intéresserons au magnétisme à l'échelle nanométrique, et plus particulièrement aux parois de domaines ferromagnétiques. À ces échelles, couvrant plusieurs centaines, voire milliers d'atomes, il est impensable de décrire les variations spatiales de l'aimantation au niveau atomique, avec une description complète et quantique du système. Il est cependant possible de capturer de manière très satisfaisante la physique d'un matériau ferromagnétique sur des dimensions nano- ou micrométriques, en traitant phénoménologiquement **l'aimantation comme un champ continu  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$** . Cette approximation, introduite par Brown en 1940 [18] est appelée *micromagnétisme*. Le micromagnétisme sous-tend généralement une seconde hypothèse, à savoir que **le champ d'aimantation a une norme constante**<sup>1</sup>  $M_s(T)$ , ne dépendant que du matériau et de la température  $T$ . Finalement, le champ  $\mathbf{M}$  d'aimantation dans un solide s'écrira comme

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) = M_s \mathbf{m}(\mathbf{r})$$

où  $\mathbf{m}$  est un champ unitaire ne traduisant que la dépendance spatiale (rotations) de l'aimantation. La norme  $M_s$  est appelée aimantation à saturation, puisque c'est la valeur du moment volumique qui apparaît dans un solide auquel on a appliqué un champ extérieur suffisamment fort pour aligner tous ses moments dans une même direction. Dans les matériaux que nous allons considérer par la suite,  $M_s$  prendra des valeurs de l'ordre de  $M_s \sim 10^6$  A/m à température ambiante. Notons qu'une quantité aussi fondamentale que  $M_s$  n'est cependant pas toujours triviale à mesurer, du moins dans des échantillons nano-structurés. Cette problématique sera l'objet du chapitre 3.

Partant des deux hypothèses du micromagnétisme, il est possible de décrire les configurations que prend le champ d'aimantation en minimisant une énergie  $\mathcal{E}$ , qui incorpore l'ensemble des interactions en jeu au niveau des moments magnétiques. Nous allons donc maintenant présenter les principales caractéristiques de ces interactions.

**Interaction d'échange** Un état ferromagnétique survient lorsqu'à une échelle microscopique les moments magnétiques voisins s'alignent spontanément dans le même sens, créant ainsi les moments macroscopiques que l'on peut observer dans les aimants. Ce comportement est illustré en figure 1.1(a).

L'origine microscopique de cet alignement est intrinsèquement quantique et intimement liée au principe d'exclusion de Pauli. De façon simpliste, les électrons avec des spins parallèles doivent être séparés du fait

---

1. L'hypothèse que la norme de l'aimantation  $M_s$  est une constante peut être considérée comme toujours valide pour les métaux de transition, et est la conséquence des interactions d'échange intra-atomiques, intrinsèquement liées au solide considéré.

du principe d'exclusion, contrairement aux électrons avec des spins anti-parallèles. Cette différence spatiale se traduit alors par une différence énergétique du fait de la répulsion Coulombienne. Dans un atome isolé, cette interaction qualifiée « d'interaction d'échange » conduit à la règle de Hund, qui impose la maximisation du spin lors du remplissage des orbitales électroniques.

La généralisation de l'interaction d'échange dans les solides est en réalité extrêmement complexe à décrire microscopiquement, recouvrant de très nombreux mécanismes simultanés [15, 17, 19]. Toutefois, et malgré sa complexité sous-jacente, il demeure possible de décrire phénoménologiquement cette interaction d'échange sous une forme très simple. Pour deux moments voisins  $\mathbf{m}_i$  et  $\mathbf{m}_j$ , le coût énergétique d'une orientation différente est donné par  $\mathcal{E}_{ij} = -J \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j$ , où  $J$  est une constante positive pour un matériau ferromagnétique. Ce coût se traduit, en passant au continu et à une constante près, par une densité d'énergie microscopique [16] :

$$E_{\text{éch}} = A_{\text{éch}} (\mathbf{grad} \mathbf{m})^2$$

$A_{\text{éch}}$  est appelée constante d'échange, et aura dans les échantillons que nous allons étudier une valeur typique de l'ordre de  $A_{\text{éch}} \sim 10^{-11}$  J/m. La constante d'échange se mesure assez précisément dans les matériaux massifs, par des expériences de résonance ferromagnétique par exemple. Dans les couches magnétiques ultra-minces que nous allons étudier,  $A_{\text{éch}}$  est en revanche beaucoup plus difficile d'accès, et est généralement connue avec une incertitude de l'ordre de 100% (voir par exemple [20–22]).

**Anisotropie magnétique** L'anisotropie traduit le fait que l'aimantation s'orientera préférentiellement suivant certains axes dans un matériau, notamment du fait du couplage spin-orbite, comme schématisé en figure 1.1(b). Conséquence des symétries des réseaux cristallins, on pourra le plus souvent, pour décrire l'anisotropie, se contenter d'un développement au premier ordre en harmoniques sphériques suivant l'axe selon lequel l'aimantation aura tendance à s'orienter, et ainsi qualifié d'axe facile d'aimantation. Si  $\theta$  est l'angle entre  $\mathbf{m}$  et cet axe, ce développement s'écrira en termes d'énergie, et à une constante près, comme

$$E_{\text{anis}} = K \sin^2(\theta) + \dots$$

avec  $K > 0$  s'exprimant en J/m<sup>3</sup>. Il peut exister de nombreux autres cas où l'anisotropie n'est pas axiale. Dans ce manuscrit cependant, nous nous restreindrons à l'étude de matériaux ultra-minces, dont l'aimantation s'oriente perpendiculairement au plan de la couche magnétique. Ces matériaux sont bien décrits par une anisotropie axiale et nous n'aurons pas besoin d'aller plus loin dans notre description.

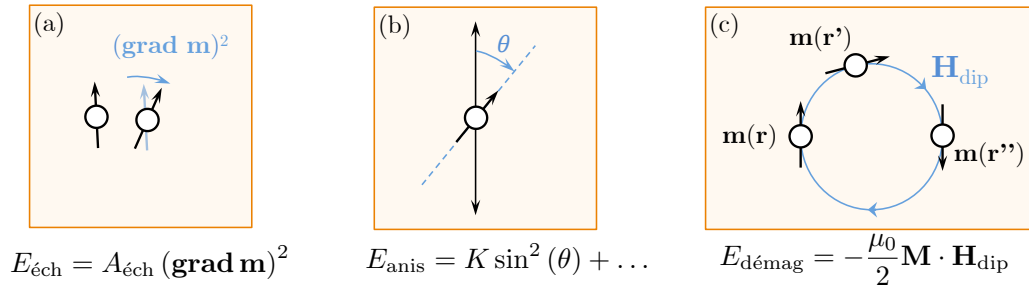


FIGURE 1.1 : **Illustration des principaux termes d'énergie microscopique.** (a) Le terme d'échange pénalise toute structure où les moments magnétiques adjacents ne sont pas colinéaires, et tend donc à créer des états uniformes. (b) L'anisotropie traduit le fait que l'aimantation s'aligne suivant des axes privilégiés. La forme réduite présentée ici ne correspond qu'à un seul axe de facile aimantation, ce qui sera le cas des couches que nous étudierons. (c) L'énergie démagnétisante est le terme le plus compliqué à prendre en compte. Il traduit le fait que les moments magnétiques s'alignent sur le champ créé par l'aimantation elle-même. Ce terme tend à faire disparaître les pôles magnétiques en créant des boucles fermées de champ magnétique dans la matière, comme schématisé ici. On perçoit donc immédiatement que toutes les interactions présentées ne sont pas satisfaites par les mêmes configurations. L'aimantation tendra donc vers un compromis global minimisant au mieux la somme de toutes ces énergies.

**Réponse à un champ extérieur** L'application d'un champ externe  $\mathbf{H}_{\text{ext}}$  aura tendance à aligner les moments magnétiques dans un matériau, suivant la direction de ce champ. L'énergie de cette interaction n'est autre que l'effet Zeeman, et s'exprime localement comme :

$$E_{\text{Zeeman}} = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{ext}}$$

où  $\mu_0$  est la perméabilité magnétique du vide.

**Champ démagnétisant** Un moment magnétique isolé est à l'origine d'un champ magnétique dipolaire. En conséquence, il règne à l'intérieur d'un matériau ferromagnétique un champ magnétique, qui correspond à la somme de tous les champs dipolaires issus de tous les moments qui composent l'aimantation. Tout comme un champ externe, ce champ appelé *champ dipolaire*, ou *champ démagnétisant*, aura tendance à orienter l'aimantation qui en est la source, comme illustré en figure 1.1(c).

Cette interaction entre différentes parties du matériau, par l'intermédiaire du champ magnétique, et donc couplant des régions non adjacentes, apporte une complexité considérable aux problèmes de micro-magnétisme. Formellement, il est possible d'exprimer cette contribution à l'énergie totale, sous la forme :

$$E_{\text{démag}} = -\frac{\mu_0}{2} \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{dip}}$$

où  $\mathbf{H}_{\text{dip}}$  représente le champ dipolaire créé à l'intérieur du matériau par le matériau lui-même. Cette contribution est assez similaire à l'énergie Zeeman, le facteur  $1/2$  étant interprétable comme le fait que le champ créé par un

dipôle ne tend pas à l'orienter lui-même, et cette contribution est donc exclue de la somme.

L'énergie démagnétisante conduit à lisser l'aimantation en faisant disparaître au maximum les « pôles magnétiques » dans la structure. Il est en effet assez simple de se convaincre que le terme source du champ démagnétisant est la divergence de l'aimantation  $\text{div}(\mathbf{M})$ , qui s'interprète comme une densité de « charges magnétiques », comme explicité en annexe A.

**Coefficients démagnétisants  $N$**  En général la contribution de l'énergie dipolaire est extrêmement délicate à prendre en compte. Cependant, dans le cas de volumes uniformément aimantés particulièrement simples, tels que des ellipsoïdes, des cylindres ou des couches planes, le champ démagnétisant  $\mathbf{H}_{\text{dip}}$  s'exprime linéairement en fonction de l'aimantation  $\mathbf{M}$  à l'échelle microscopique,

$$\mathbf{H}_{\text{dip}} = N_x M_x + N_y M_y + N_z M_z = M_s (N_x m_x + N_y m_y + N_z m_z)$$

où les axes  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  sont les axes principaux du volume. Les coefficients  $N_i$  dont la somme vaut 1 sont appelés coefficients démagnétisants<sup>2</sup>, et sont tabulés pour de nombreuses géométries [16, 23–25]. Il en résulte que dans ce cas très particulier, l'énergie dipolaire s'écrit à l'échelle microscopique comme

$$E_{\text{démag}} = -K_d \sum_{i \in \{x, y, z\}} N_i m_i^2$$

en faisant apparaître la constante d'énergie  $K_d = \mu_0 M_s^2 / 2$ , qui est la borne que peut atteindre l'énergie démagnétisante. Les coefficients démagnétisants peuvent être utiles pour dériver des résultats analytiques, et extraire les comportements physiques d'un système. Il faut cependant insister sur le fait qu'ils restent généralement une approximation assez crue et que, notamment dans des structures de taille finie, seules des simulations micro-magnétiques complètes permettent d'approcher de manière fiable les configurations d'aimantation.

*In fine*, l'énergie  $\mathcal{E}$  s'écrira comme la somme sur tout le volume du matériau des énergies microscopiques introduites précédemment, soit

$$\mathcal{E} = \int_{\mathcal{V}} (E_{\text{éch}} + E_{\text{anis}} + E_{\text{Zeeman}} + E_{\text{démag}} + \dots) d\mathcal{V}$$

où il est possible d'inclure d'autres interactions via leur énergie, comme les termes d'énergie magnétoélastique qui ne nous intéresseront pas dans le cas des couches ultra-minces étudiées.

---

2. L'introduction des coefficients démagnétisants est ici volontairement réduite à un cas particulier, mais ceux-ci ont en réalité une définition plus large et plus rigoureuse, à partir du tenseur liant le champ démagnétisant à une aimantation uniforme. Une explication claire et détaillée est présentée par exemple dans le cours d'O. Fruchart, en référence [23].

### 1.1.2 Domaines magnétiques et parois

Les différentes interactions que nous venons de présenter sont généralement en compétition à l'intérieur d'un matériau ferromagnétique. Par exemple, tandis que l'échange tend à conserver au maximum tous les moments magnétiques alignés, le champ dipolaire tendra dans certains cas à ce que des moments éloignés soient anti-parallèles, comme illustré schématiquement en figure 1.1. La compétition entre les interactions conduit à une frustration du système qui tente de satisfaire toutes les contraintes simultanément, et se traduit par l'apparition d'échelles caractéristiques sur lesquelles certaines des interactions prédominent.

La compétition entre échange et énergie démagnétisante est déterminée par la longueur caractéristique  $\Lambda = \sqrt{A_{\text{éch.}}/K_d} = \sqrt{2A_{\text{éch.}}/\mu_0 M_s^2}$ . Pour des matériaux dont les dimensions excèdent cette longueur  $\Lambda$ , on peut observer une subdivision du matériau en régions uniformément aimantées, appelées domaines magnétiques<sup>3</sup>, comme schématisé en figure 1.2. L'échange est ainsi satisfait à courte distance, tandis que sur des dimensions plus grandes, le matériau satisfait globalement l'interaction démagnétisante. Entre ces domaines uniformément aimantés, l'aimantation varie relativement rapidement au niveau de ce que l'on appelle **les parois de domaines** magnétiques, qui seront l'objet d'étude central de ce manuscrit. La paroi de domaine est en effet au cœur des problématiques actuelles de stockage magnétique de l'information.

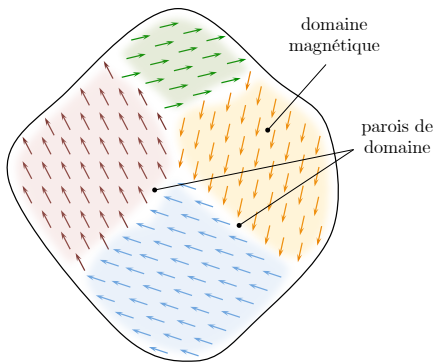


FIGURE 1.2 : **Parois de domaines magnétiques.** Illustration du concept de domaine magnétique. À l'intérieur des régions colorées, les domaines magnétiques, l'aimantation est quasi-uniforme, ce qui est favorable du point de vue de l'échange. À l'échelle du matériau, le découpage en plusieurs domaines diminue l'énergie démagnétisante. Entre les domaines magnétiques, l'aimantation varie rapidement au niveau de **parois de domaines**.

### 1.1.3 Contexte applicatif

Depuis les années 1980, les domaines magnétiques représentent la brique de base dans la majorité des dispositifs de stockage de l'information, dont l'exemple roi est le disque dur. Dans les disques durs, l'information est encodée dans l'orientation de l'aimantation des domaines, comme schématisé en figure 1.3(b), puis lue grâce à une tête de lecture – un capteur magnéto-résistif. Pour accéder aux données, le disque est simplement déplacé sous la tête de lecture qui voit défiler les domaines. Cette approche est particulièrement intéressante, car les données sont encodées de manière non-volatile du fait de la rémanence magnétique.

Cependant, avec l'avènement de l'ère numérique, les dernières années ont vu une explosion du volume de données stockées. Ceci s'est traduit par une augmentation de la consommation énergétique des centres de

3. Historiquement, l'existence de domaines magnétiques avait déjà été postulée en 1907 par P. Weiss [26], afin d'expliquer ses observations lors de l'aimantation sous champ à la pyrrhotite. Ce n'est qu'ensuite qu'il a développé son modèle de « champ moléculaire » pour expliquer le ferromagnétisme, et qui, encore bien plus tard, sera interprété comme l'interaction d'échange. Les premières observations de domaines ont quant à elles été réalisées plus de vingt ans après, en 1931 [27, 28].



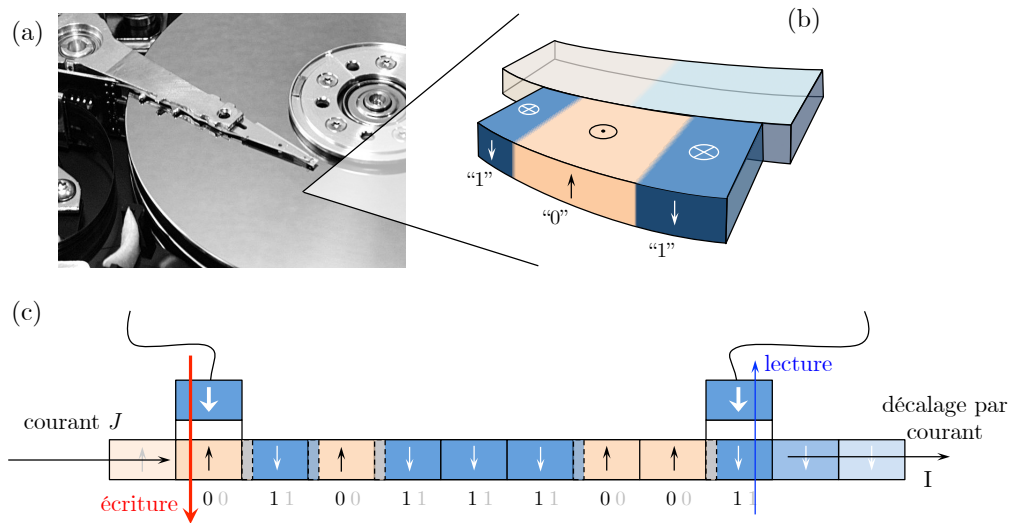


FIGURE 1.3 : **Domaines magnétiques pour le stockage de l'information.** (a) Disque dur (*source : wikipedia commons*) (b) Schéma illustrant le stockage de l'information dans l'orientation de domaines magnétiques dans un disque dur. Un domaine aimanté vers le haut correspond par exemple à un "0". Afin d'écrire ou d'accéder à l'information, le disque dur contenant les domaines est tourné à très grande vitesse ( $> 5000$  trs/min). Ce mouvement mécanique est une des principales limitations du disque dur. (c) Schéma du principe d'une *racetrack memory*, proposée par Parkin et collègues en 2008 [5]. La *racetrack* est un exemple des nouvelles architectures reposant sur le déplacement des parois sous l'action d'un courant qui pourraient remplacer les disques durs.

stockage des données [1], et l'utilisation des disques durs est de plus en plus remise en question. Si l'encodage magnétique de l'information y est extrêmement robuste, la rotation des disques à plusieurs milliers de tours par minute, qui permet l'accès aux données, est loin d'être optimale et conduit à une grande consommation énergétique. Il apparaît donc très important de s'affranchir de ce mouvement mécanique, tout en conservant les possibilités offertes par le stockage de l'information sous forme de domaines magnétiques.

Des architectures ont ainsi revu le jour, s'appuyant sur le déplacement sous champ magnétique des domaines – *i.e.* de manière équivalente, des parois de domaine [2] –, dans la lignée des mémoires à bulles magnétiques abandonnées dans les années 1980. Dans ces systèmes, le champ magnétique servant à déplacer les domaines est obtenu en faisant circuler des courants électriques dans des fils, à proximité de la structure. Il est donc difficile d'obtenir des champs magnétiques très localisés. Il existe toutefois une autre manière de déplacer des parois magnétiques à l'aide de courants. Comme l'avait théorisé Louis Berger à la fin des années 1970 [29], le passage d'un courant **au travers de la couche magnétique** peut directement déplacer une paroi. La grandeur physique en jeu étant la densité de courant qui traverse la paroi, les premières mises en évidence du phénomène requéraient pour propager les parois dans des aimants massifs des courants colossaux, de plusieurs dizaines d'ampères [30], rendant l'expérience difficile à réaliser et à interpréter, et écartant toute possibilité

d'application. Le développement des techniques de nano-fabrication a cependant complètement fait disparaître ce problème. À l'heure actuelle, de très nombreuses nouvelles architectures reposent sur le déplacement de parois par l'action directe de courants, pour le traitement et le stockage de l'information. On pourra citer par exemple la possibilité de fabriquer des memristors [31], ou encore le protocole de *racetrack memory* introduit par Parkin et collègues en 2008 [4, 5], dont le principe est schématisé en figure 1.3(c). Dans une *racetrack* comme dans un disque dur, l'information est encodée dans l'orientation de domaines magnétiques. La différence réside dans le fait que, dans une *racetrack*, l'accès aux données se fait en déplaçant ces domaines avec des courants électriques, jusqu'aux têtes de lecture et d'écriture. Le développement de ce type d'architectures très prometteuses nécessite cependant le franchissement de plusieurs obstacles, avant d'atteindre le stade de l'industrialisation [3].

Dans toutes ces applications, l'enjeu est la compréhension et la maîtrise du déplacement des parois. Le matériau joue dans cette problématique un rôle primordial, puisqu'il est le siège des défauts, mais détermine également par sa composition, autant que par ses dimensions, les phénomènes à l'origine du déplacement des parois, et leur efficacité. Nous allons donc présenter plus en détail les échantillons que nous étudierons.

#### 1.1.4 Films ferromagnétiques ultra-minces et anisotropie perpendiculaire

Dans l'esprit de développer de nouvelles architectures pour le stockage et le traitement de l'information, la communauté du nano-magnétisme s'est tournée ces dernières années vers les couches ultra-minces où le matériau ferromagnétique n'a pour épaisseur que quelques couches atomiques. Disposer de couches d'épaisseur si faible est avantageux car cela permet de réduire l'intensité des courants requis pour propager les parois de domaines. Toutefois, leur intérêt provient surtout de leur propension à présenter une forte anisotropie perpendiculaire au plan de la couche. On parle alors de couches à aimantation perpendiculaire.

Dans ces couches ultra-minces à aimantation perpendiculaire, les parois sont en effet beaucoup plus étroites ( $\sim 10$  nm) que dans les couches à aimantation planaire ( $\sim 100$  nm ou plus). En conséquence les densités limites pour le stockage d'information sont supérieures dans ces matériaux. D'autre part, les parois dans les couches à aimantation hors-plan se propagent à des courants beaucoup plus faibles, et les effets de chauffage par effet Joule y sont moins importants [11, 32–36].

Physiquement, l'anisotropie perpendiculaire dans les couches ultra-minces est un phénomène d'interface. L'existence d'un terme d'anisotropie aux interfaces avait été prédite par Néel en 1954 [37]. Celle-ci peut se comprendre comme la conséquence de la modification des symétries du cristal à l'interface, qui, associée au couplage spin-orbite, favorise certaines orientations des spins. À la constante d'énergie d'anisotropie de volume  $K_v$  s'ajoute ainsi un terme d'interface  $K_i$ , dont la contribution décroît avec l'épaisseur  $t$  du matériau, et on a typiquement

$$K = \frac{K_i}{t} + K_v$$

avec  $K_i \sim 10^{-3} \text{ J/m}^2$  et  $K_v \sim 10^4 \text{ J/m}^3$ . La contribution de la surface du matériau à l'anisotropie est donc en général noyée dans celle du volume. En revanche, lorsque  $t$  diminue, leur rôle peut devenir comparable,

voire inversé, et on peut voir apparaître une aimantation perpendiculaire<sup>4</sup>. En réalité, ce cas est tout de même très défavorable en termes d'énergie démagnétisante, faisant apparaître des pôles magnétiques sur toute la surface du matériau. On a ainsi une **diminution artificielle de l'énergie d'anisotropie due au champ démagnétisant**, en  $K_{\text{eff}} = K_i/t + K_v - K_d N_{\perp}$ , où  $N_{\perp} = 1$  est le coefficient démagnétisant pour une plaque [38]. Finalement, c'est seulement dans des couches magnétiques ultra-minces, dont l'épaisseur n'excède pas quelques couches atomiques que l'on pourra voir une anisotropie perpendiculaire.

Plusieurs interfaces peuvent conduire à une anisotropie perpendiculaire. Comme nous l'avons mentionné, celle-ci étant lié au couplage spin-orbite, deux types d'interfaces sont principalement utilisées : les interfaces avec un métal lourd (Pt [11, 34], Pd [39], ...) à fort couplage spin-orbite, et plus récemment, les interfaces avec une couche d'oxyde comme le MgO [40]. Tous les échantillons que nous étudierons dans ce manuscrit entrent dans ces catégories.

Nous avons souligné que la clé dans de nombreuses applications est la compréhension ainsi que la maîtrise du déplacement des parois de domaines magnétiques. Dans le cadre du micromagnétisme, c'est l'énergie libre de l'aimantation qui gouverne son évolution. Il est donc naturel de s'intéresser avant tout à l'énergie des parois de domaines. Nous aurons ainsi un support pour détailler les axes que nous allons développer dans ce manuscrit. Avant tout, nous allons avoir besoin d'explicitier la structure de l'aimantation au niveau d'une paroi, afin d'établir son énergie. Ceci fait l'objet du paragraphe suivant.

### 1.1.5 Structure des parois dans les films ultra-minces

Dans une couche ultra-mince, l'épaisseur du matériau est plus faible que toutes les longueurs caractéristiques liées aux compétitions entre les différentes énergies. En particulier que la longueur caractéristique  $\Lambda = \sqrt{A_{\text{éch.}}/K_d}$  est inférieure à 10 nm. De ce fait, **l'aimantation ne varie pas dans l'épaisseur de la couche**. Lorsque l'anisotropie est perpendiculaire, on n'a donc que peu de possibilités pour le retournement de l'aimantation au niveau d'une paroi. Seule la composante de l'aimantation contenue dans le plan de la couche magnétique (l'aimantation planaire) n'est pas imposée par l'anisotropie, et c'est elle qui définit la structure de la paroi. En conséquence, le profil statique d'une paroi localement perpendiculaire à la direction  $\hat{x}$  sera complètement déterminé par la donnée des angles  $\theta(x)$  par rapport à la verticale  $\hat{z}$ , et  $\psi(x)$  par rapport à  $\hat{x}$ , comme indiqué en figure 1.4(a) et (b).

**La paroi de Bloch :  $\psi = \pm\pi/2$**  Dans le cas où  $\psi = \pm\pi/2$ , l'aimantation tourne de manière hélicoïdale à la traversée de la paroi. On parle alors de parois de Bloch. Pour une paroi de longueur infinie, l'aimantation planaire de la paroi ne crée pas de charges magnétiques – celles-ci étant repoussées à l'infini. En prenant en compte la contribution des charges de surface comme une renormalisation de l'anisotropie, alors caractérisée par la constante  $K_{\text{eff}} = K - K_d$  (cf. §1.1.4), on peut considérer que la paroi n'a aucun coût en termes d'énergie

---

4. L'apparition d'une richesse de phénomènes du fait de la prédominance des interactions d'interface est d'ailleurs un aspect très général des couches ultra-minces. Ces matériaux ont donc un intérêt bien plus que simplement applicatif, puisqu'ils voient l'émergence de nouveaux phénomènes physiques.

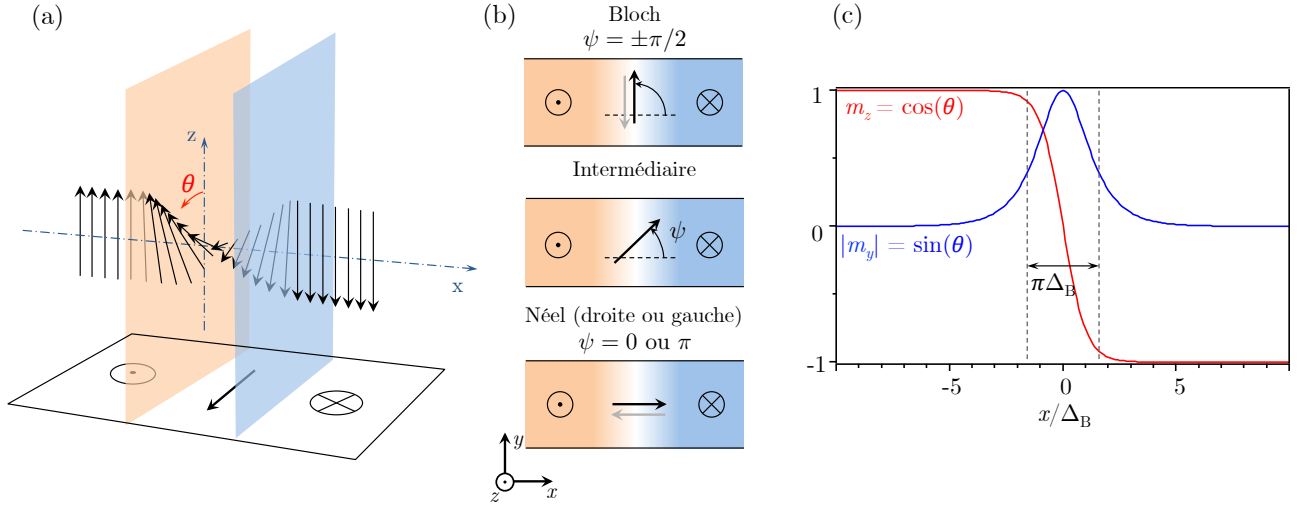


FIGURE 1.4 : **Parois dans les films ultra-minces.** (a) et (b) Différents types de parois pouvant exister dans les films ultra-minces à anisotropie perpendiculaire. La paroi est définie par les angles  $\theta$  et  $\psi$ , respectivement par rapport à la verticale  $\hat{z}$  et à la normale à la paroi  $\hat{x}$ . La paroi de Néel ( $\psi = 0$  ou  $\pi$ ) correspond à une rotation cycloïdale de l'aimantation, tandis que la paroi de Bloch ( $\psi = \pm\pi/2$ ) présente un profil hélicoïdal, tel que représenté en (a). Si la dimension du film suivant  $\hat{y}$  est grande devant la largeur de la paroi, une paroi de Bloch ne présente pas de charges magnétiques, et est donc plus stable du point de vue magnétostatique qu'une paroi de Néel. On est alors capable de calculer analytiquement le profil  $\theta(x)$  de la paroi, qui correspond seulement à la compétition entre l'échange et l'anisotropie. (c) On a ici tracé les deux composantes  $m_x = \sin(\theta)$  et  $m_z = \cos(\theta)$  de l'aimantation au travers d'une paroi de Bloch. Sa largeur caractéristique est donnée par la longueur de Bloch,  $\Delta_B = \sqrt{A_{\text{éch}}/K_{\text{eff}}}$  qui traduit la compétition entre l'échange et l'anisotropie effective.

démagnétisante. Le profil est alors déterminé uniquement par la compétition entre l'échange et l'anisotropie. Il est dans ce cas possible, comme l'a fait Bloch en 1932 [41], de dériver analytiquement ce profil de la paroi. On obtient, pour un profil à une seule dimension (1D)

$$\theta(x) = 2 \cdot \arctan \left( \exp \left( \frac{x - x_0}{\Delta_B} \right) \right)$$

soit en termes de composantes d'aimantation

$$\begin{cases} m_z = \cos(\theta) = -\tanh \left( \frac{x - x_0}{\Delta_B} \right) \\ m_x = 0 \\ m_y = \pm \sin(\theta) = \pm \frac{1}{\cosh \left( \frac{x - x_0}{\Delta_B} \right)} \end{cases} \quad (1.1)$$

On a introduit la distance  $\Delta_B = \sqrt{A_{\text{éch}}/K_{\text{eff}}}$ , qui s'interprète comme la longueur caractéristique de la compétition entre échange et anisotropie, et dont on constate qu'elle correspond à la largeur typique de la paroi de domaine. Ceci se comprend aisément car l'échange aura tendance à conserver les moments alignés et donc à étaler la paroi sur une distance infinie, tandis que l'anisotropie tendra au maximum à conserver l'aimantation alignée sur l'axe facile, et donc à ce que la paroi soit infiniment abrupte. Le profil d'une paroi de Bloch est tracé en figure 1.4(c), et peut présenter deux chiralités, droite ( $\psi = \pi/2$ ), ou gauche ( $\psi = -\pi/2$ ).

**Paroi de Néel  $\psi = 0$  ou  $\pi$**  Le second type de paroi correspond à une l'aimantation planaire perpendiculaire à la paroi,  $\psi = 0$  ou  $\pi$ . On parle alors de parois de Néel. Ce retournement cycloïdal de l'aimantation peut également présenter deux chiralités, droite ( $\psi = 0$ ), ou gauche ( $\psi = \pi$ ). La paroi de Néel présente, contrairement à la paroi de Bloch, des charges magnétiques de part et d'autre de la paroi. Par rapport à la paroi de Bloch, on a donc un champ démagnétisant supplémentaire. Ce champ induit un surcoût énergétique, et les parois de Néel sont donc moins stables du point de vue magnétostatique que les parois de Bloch, au moins dans un film infini (paroi 1D). Notons que la paroi de Bloch reste plus stable que la paroi de Néel tant que la longueur de la paroi (suivant  $\hat{y}$  avec les notations de la figure 1.4(b)) est grande devant sa largeur  $\pi\Delta_B$ . Au delà, les charges magnétiques aux extrémités d'une paroi de Bloch seront plus importantes que celles créées de part et d'autre d'une paroi de Néel, laquelle deviendra plus favorable du point de vue magnétostatique. Cette transition a été prédite par Néel en 1955 [42, 43], ce qui a valu leur nom à ces parois. Elle a notamment bien été observée dans des couches ultra-minces, avec des pistes étroites de Co|Ni, en 2011 par Koyama et collègues [44].

En ce qui concerne sa structure interne, la paroi de Néel a un profil  $\theta(x)$  très proche de celui d'une paroi de Bloch, car le champ démagnétisant de la paroi ne contribue que comme une petite correction [10]. On pourra donc considérer que l'aimantation d'une paroi est donnée par l'équation (1.1), en échangeant  $m_y$  et  $m_x$ . Ce changement de structure interne a **un impact considérable sur l'efficacité des mécanismes permettant la propagation des parois sous l'action d'un courant électrique** [9, 10, 13]. C'est pourquoi il apparaît très important de disposer de techniques pour déterminer la structure interne des parois de domaines. Nous développerons ces aspects au chapitre 4, en introduisant tout d'abord les différents mécanismes conduisant au déplacement des parois sous l'action d'un courant, puis en présentant une méthode pour déterminer la structure des parois.

**Cas général ( $\psi$  quelconque)** Par exemple en appliquant un champ dans le plan, ou si d'autres interactions favorisent les parois de Néel, on pourra parcourir toutes les valeurs de  $\psi$ . On aura alors, avec les conventions de la figure 1.4(b),

$$\mathbf{M} = M_{\perp}(x)\mathbf{u}_z + M_{\parallel}(x) [\cos(\psi)\mathbf{u}_x + \sin(\psi)\mathbf{u}_y]$$

où  $M_{\perp} = M_z = M_s \tanh((x - x_0)/\Delta_B)$  et  $M_{\parallel} = M_s / \cosh((x - x_0)/\Delta_B)$ .

### 1.1.6 Énergie d'une paroi

Nous pouvons désormais expliciter le coût énergétique d'une paroi  $\mathcal{E}_{\text{paroi}}$  qui est proportionnel à sa longueur  $l_{\text{paroi}}$  ainsi qu'à l'épaisseur  $t$  du matériau. On le décrit ainsi simplement par l'énergie surfacique de la paroi  $\sigma = \int E_{\text{paroi}}(x) dx$ . Cette énergie surfacique  $\sigma$  se décompose pour un profil 1D, comme

$$\sigma = \sigma_0 + \sigma_{\text{démag}} + \sigma_{\text{ext}}.$$

- $\sigma_0 = 4\sqrt{A_{\text{éch}}K_{\text{eff}}}$  traduit le coût intrinsèque d'une paroi, dû à l'échange et à l'anisotropie effective ;
- $\sigma_{\text{démag.}} = 2\Delta_B N_x K_d \cos^2(\psi)$ , où  $N_x \approx \ln(2)t/(\pi\Delta_B) \ll 1$  est le coefficient démagnétisant associé à la composante planaire  $m_x$  de la paroi<sup>5</sup> (voir par exemple [10, 38]). On retrouve notamment le fait que la paroi de Bloch ( $\cos^2(\psi) = 0$ ) est plus stable que la paroi de Néel ;
- enfin,  $\sigma_{\text{ext}}$  représente les termes supplémentaires pouvant apparaître dans l'énergie de la paroi, comme par exemple le terme d'énergie Zeeman apparaissant lorsque l'on applique un champ externe.

Une paroi aura finalement une énergie totale :

$$\mathcal{E}_{\text{paroi}} = t \times l_{\text{paroi}} [\sigma_0 + \sigma_{\text{démag}} + \sigma_{\text{ext}}] \quad (1.2)$$

**Cette énergie, associée à une paroi de domaine est au cœur de l'ensemble de cette thèse. Nous nous intéresserons tour à tour à l'impact de différents paramètres de cette énergie.**

Dans les deux chapitres qui suivent, nous nous intéresserons à des situations pour lesquelles le terme  $\sigma_{\text{ext}}$  est nul. Dans ce cas, l'énergie est minimale pour une paroi de Bloch, qui annule le terme démagnétisant. Nous nous focaliserons donc sur des manières d'**altérer  $\sigma_0$** .

Nous commencerons, dans le chapitre 2, par étudier les effets d'un chauffage local du matériau avec un laser. Ceci permet de diminuer localement  $\sigma_0$ , défini jusqu'ici seulement à température nulle. Avec la température,  $\sigma_0(T)$  varie en effet comme  $(M_s(T)/M_s(0))^2$  [20]. En chauffant ponctuellement la couche magnétique, nous montrerons que l'on crée des régions énergétiquement favorables pour une paroi, et l'amènerons à s'y déplacer. Nous pourrions ainsi étudier les barrières d'énergie liées au piégeage de la paroi par les défauts du matériau. En déplaçant la paroi de site de défaut en site de défaut, nous pourrions également explorer les configurations stables de la paroi, et cartographier l'ensemble des sites de piégeage d'une piste magnétique.

Dans le chapitre 3, nous étudierons les effets d'une irradiation de la couche magnétique avec des ions  $\text{He}^+$ . Un tel traitement permet de façonner le matériau, en créant en quelque sorte des défauts artificiellement. L'irradiation a pour conséquences principales de diminuer à la fois le champ coercitif du matériau et l'aimantation à saturation  $M_s$ . Nous introduirons donc une méthode pour mesurer  $M_s$  localement, puis nous utiliserons la diminution du champ coercitif pour nucléer facilement des parois et les étudier.

5. Dans un profil à deux dimensions, une piste par exemple, on peut remplacer  $N_x$  par  $(N_x - N_y)$  ce qui permet de décrire le champ démagnétisant d'une paroi de Bloch de taille finie.

Le chapitre 4, enfin, sera consacré à mettre en évidence la présence d'une nouvelle interaction dans certaines couches ultra-minces, l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DM). Cette interaction contribue à l'énergie de la paroi via un terme  $\sigma_{\text{ext}} = \pi D_{\text{DM}} \cos(\psi)$ . L'interaction DM modifie donc la structure de la paroi, en favorisant les configurations de type Néel, ce qui peut altérer de manière considérable le comportement des parois sous l'action d'un courant [10]. L'étude de l'interaction DM a donc un intérêt double, à la fois fondamental, pour la compréhension du magnétisme, mais également applicatif, dans le but de réaliser des systèmes de traitement et de stockage de l'information efficaces. Afin de mettre en évidence cette interaction, nous présenterons une méthode directe pour déterminer la nature (Bloch ou Néel) d'une paroi de domaine magnétique.

Pour développer l'ensemble de ces points, il est avant tout nécessaire d'être capable d'observer les parois, mais également de déterminer leur structure d'aimantation. Il faut pour cela disposer d'une technique d'imagerie qui soit avant tout **résolue**, à des échelles comparables à la largeur des parois  $\pi\Delta_B$  ( $\sim 10 - 100$  nm), et suffisamment **sensible** pour détecter le signal des quelques moments magnétiques au centre de la paroi – seulement quelques milliers de magnétons de Bohr par nanomètre de paroi. Outre ces critères ambitieux, on souhaiterait dans l'idéal disposer d'une technique qui soit également **versatile**, pouvant étudier des échantillons sans contraintes d'environnement, ou de propreté (cristallinité, état de surface...). Avec ces critères à l'esprit, nous allons maintenant tenter de rassembler et comparer les différentes techniques disponibles pour l'imagerie magnétique.

## 1.2 Imagerie des parois de domaine dans les couches ultra-minces ferromagnétiques

Depuis les premières images de parois de domaines magnétiques, produites simultanément par L. v. Hámos et P. A. Thiessen [27], et par F. Bitter [28] en 1931, l'imagerie magnétique a beaucoup progressé. En particulier, les trente dernières années ont vu fleurir de nouvelles techniques d'imagerie magnétique, que nous allons ici présenter.

L'étude des parois magnétiques peut être réalisée en suivant deux approches distinctes. On peut soit mesurer directement l'aimantation  $\mathbf{M}$ , via son interaction avec des « particules-sondes », soit mesurer le champ magnétique  $\mathbf{B}$  émanant d'une paroi. Ces deux approches étant radicalement différentes, puisqu'elles ne donnent pas accès à la même grandeur, nous avons choisi de les séparer.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux techniques de mesures d'aimantation (§1.2.1), qui, à l'exception de la microscopie Kerr, présentent beaucoup plus de contraintes que les techniques de mesure de champ, mais qui apportent une information directe sur l'aimantation. Nous présenterons ensuite les techniques de mesure de champ magnétique (§1.2.2), beaucoup moins invasives et ainsi plus appropriées à l'étude d'échantillons "standards".

## 1.2.1 Techniques d'imagerie de l'aimantation par interaction avec des « particules-sondes »

### 1.2.1.1 Microscopie Kerr et autres techniques magnéto-optiques

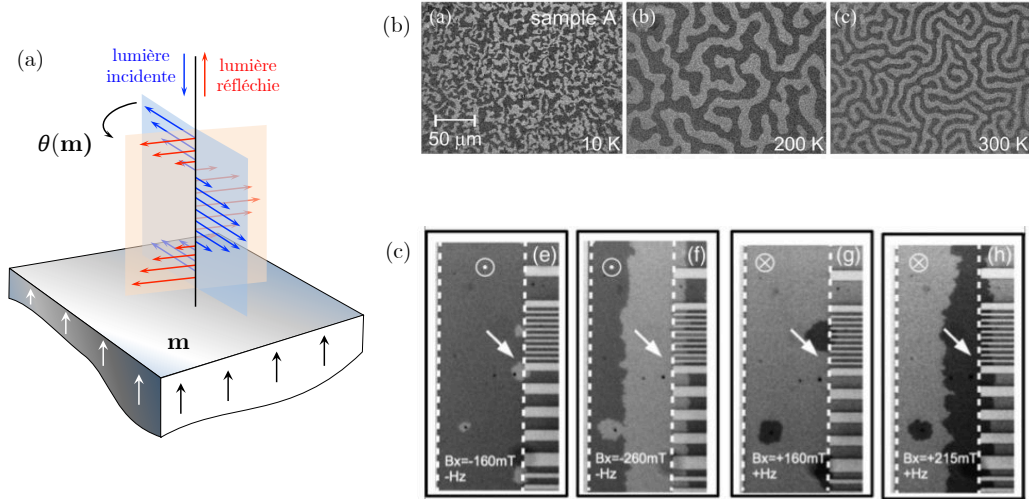


FIGURE 1.5 : **MOKE**. (a) Principe de la microscopie Kerr polaire. Le plan de polarisation de la lumière réfléchie est tournée d'un angle  $\theta$ , qui dépend de l'aimantation  $\mathbf{m}$ , par rapport à la polarisation incidente. La détection de cette rotation, avec des polariseurs, permet de remonter à l'orientation de  $\mathbf{m}$ . (b) Figure tirée de l'article de Yamanouchi [20] et collègues, montrant l'évolution de domaines magnétiques dans un film ultra-mince de CoFeB en changeant la température entre 10 et 300 K (c) Propagation de parois de domaines dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub> sous l'application de champs magnétiques. Image tirée de l'étude de Pizzini et collègues [45]. Largeur de la zone entre pointillés : 70  $\mu\text{m}$ .

Les photons dans la gamme du visible sont certainement les particules dont l'interaction avec la matière peut fournir de la manière la plus simple une information magnétique. Ces interactions, regroupés sous le terme magnéto-optique, sont nombreuses et détaillées par exemple dans le livre de Hubert et Schäfer [16]. L'effet magnéto-optique qui nous intéressera ici particulièrement est l'effet Kerr, qui se traduit principalement par une rotation de la polarisation rectiligne d'une onde lumineuse, lors de sa réflexion sur une surface magnétique<sup>6</sup>, comme illustré en figure 1.5(a).

L'effet Kerr est un effet qui ne permet de sonder le magnétisme qu'à proximité de l'interface, sur des épaisseurs typiques de l'ordre de 10 nm, et requiert un bon état de surface de l'échantillon. Les films ultra-minces satisfont par nature à cette contrainte, ce qui vaut à la **microscopie Kerr** (ou **MOKE**) d'être une des techniques les plus utilisées pour y étudier les parois de domaines et leur propagation. La microscopie Kerr est en effet extrêmement versatile, permettant d'imager les échantillons sous conditions ambiantes, ou en variant de très nombreux paramètres (champ magnétique, température, courant, etc.), tout en bénéficiant de la

6. Le pendant en transmission de l'effet Kerr, l'effet Faraday, est relativement moins intéressant car il nécessite des échantillons transparents. Il peut tout de même être utilisé pour observer des domaines, comme par exemple dans les premières expériences du groupe de L. Berger sur la propagation des parois sous courant [30].



dynamique de l'optique. Il est même possible dans le cas d'études pompe-sonde avec des lasers pulsés d'atteindre des résolutions temporelles de l'ordre de la pico-seconde (voir par exemple [46]). Dans le cas des échantillons à anisotropie perpendiculaire au plan de la couche, la configuration utilisée est une configuration dite polaire, où le faisceau optique arrive en incidence normale sur l'échantillon, comme décrit sur le schéma 1.5(a).

La microscopie Kerr présente tout de même deux inconvénients majeurs. Le premier est que le signal à détecter est généralement très faible, et nécessite des techniques relativement élaborées de détection (post-traitement numérique des données ou utilisation d'interféromètre de Sagnac, par exemple), et une certaine stabilité des montages. Ensuite, l'inconvénient principal du MOKE est sa résolution spatiale, limitée par la diffraction à  $\lambda/2 \text{ O.N.}$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la lumière utilisée et O.N. l'ouverture numérique de collection. Dans le visible, la résolution spatiale est donc au mieux de l'ordre de  $\sim 250 \text{ nm}$ . Une piste poursuivie pour améliorer cette résolution a été d'utiliser des techniques de champ proche optique combinées aux effets magnéto-optiques [47–50]. Ces approches nécessitent toutefois des systèmes expérimentaux beaucoup plus complexes et contraignants que le MOKE, pour un gain en résolution qui semble demeurer discutable.

En conclusion, la microscopie Kerr est une méthode efficace et extrêmement versatile, mais dont la résolution est limitée par la diffraction optique. Ainsi, il est impossible de déterminer la structure des parois de domaine par cette méthode, ou simplement d'étudier leur déplacement sur des distances de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres.

### 1.2.1.2 Dichroïsme magnétique circulaire des rayons X

Une seconde approche qui utilise toujours des photons comme particules-test consiste à utiliser des longueurs d'onde bien plus faibles, de l'ordre du nanomètre, permettant ainsi d'améliorer la résolution spatiale. La génération de ces faisceaux, dans la gamme des rayons X, nécessite l'utilisation d'un synchrotron. Les photons, alors beaucoup plus énergétiques, vont cette fois directement sonder les transitions électroniques dans le matériau.

Dans un matériau magnétique, les règles de sélection pour les transitions des électrons de cœur vers le niveau de Fermi conduisent généralement à une différence de section efficace d'absorption, suivant la polarisation de la lumière incidente. Sans entrer dans les subtilités de ces règles, il est souvent possible d'observer un **dichroïsme circulaire magnétique des rayons X** ou **XMCD**, c'est-à-dire une différence d'absorption entre une polarisation circulaire droite ou gauche. Cette différence dépend de la composante du moment magnétique suivant l'axe du faisceau de rayons X, comme schématisé en figure 1.6. Le phénomène de XMCD a conduit, depuis les travaux précurseurs de G. Schütz *et al.* à la fin des années 80 [51,52], à de nombreuses avancées dans la compréhension microscopique du magnétisme (voir par exemple [53,54]). En outre, un des principaux intérêts du XMCD réside dans sa sélectivité chimique, puisqu'à une énergie de transition correspond une unique espèce. Il est ainsi possible d'étudier différents éléments dans un alliage ou une multicouche, ce qui constitue la majorité des échantillons rencontrés dans l'industrie.

En se plaçant au niveau d'un des maxima du signal de dichroïsme (par exemple au niveau de la raie  $L_3$  sur le schéma de la figure 1.6(b)), le XMCD peut être utilisé pour l'imagerie magnétique, suivant deux approches

principales, que nous allons rapidement présenter.

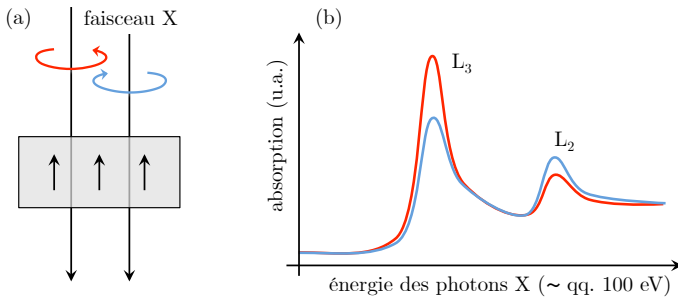


FIGURE 1.6 : **Illustration du dichroïsme magnétique circulaire (XMCD)**. (a) Schéma de l'expérience. Un matériau ferromagnétique est éclairé par un faisceau de rayons X polarisés circulairement. (b) Allure typique que peut avoir un spectre d'absorption pour un élément 3d tel que le fer, au niveau des transitions  $L_2$  ( $2p_{1/2} \rightarrow 3d$ ) et  $L_3$  ( $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ ). L'absorption des polarisations circulaires droite et gauche est différente. Si on retourne l'aimantation, cette différence est renversée.

**Microscopie magnétique à transmission de rayons X (MTXM)** La première manière courante d'utiliser le XMCD pour l'imagerie est de mesurer directement la transmission, par l'échantillon à étudier, d'un rayonnement X polarisé circulairement. Un changement d'orientation de l'aimantation conduit à un contraste d'absorption et donc de transmission du faisceau X.

Afin d'obtenir des images, les schémas suivis sont assez similaires à ceux utilisés pour la formation des images en optique conventionnelle, à l'exception que les seules optiques disponibles sont les lentilles de Fresnel, du fait de la forte absorption des rayons X mous par la matière. Les configurations typiques sont présentées dans la référence [55], où elles sont accompagnées de plus amples précisions sur la technique. L'image peut également être produite sans lentilles, par holographie, moyennant l'utilisation d'un faisceau de référence, par exemple obtenu par le perçage d'un petit trou dans l'échantillon [56]. La résolution, ultimement limitée par la longueur d'onde associée à la transition électronique sondée (de l'ordre du nanomètre), est dans les faits le plus souvent limitée par les optiques utilisées à quelques dizaines de nanomètres [57].

D'autre part, les techniques de MTXM requièrent des échantillons dédiés dont le substrat est transparent aux rayons X mous et suffisamment minces ( $\sim 500$  nm), ce qui constitue dans les faits une grosse contrainte expérimentale et requiert des échantillons dédiés.

La durée d'acquisition d'une image est généralement de l'ordre de la seconde pour accumuler suffisamment de signal. Elle dépend de la densité de moments à mesurer, du dichroïsme, et de l'intensité du rayonnement synchrotron. On peut cependant signaler la possibilité de réaliser des expériences dynamiques par stroboscopie, la durée des impulsions X étant intrinsèquement assez brèves ( $< 100$  ps) [55].

**Microscopie d'électrons photo-émis par rayons X (X-PEEM)** La seconde façon de réaliser des images magnétiques en utilisant le XMCD, beaucoup moins contraignante en termes d'échantillon, est la technique de X-PEEM [58]. L'absorption des rayons X par le matériau magnétique conduit à la création de trous au cœur de la structure électronique des atomes. La relaxation des atomes excités peut se traduire par l'émission d'électrons très énergétiques, par exemple par processus Auger. Ces électrons très énergétiques conduisent par

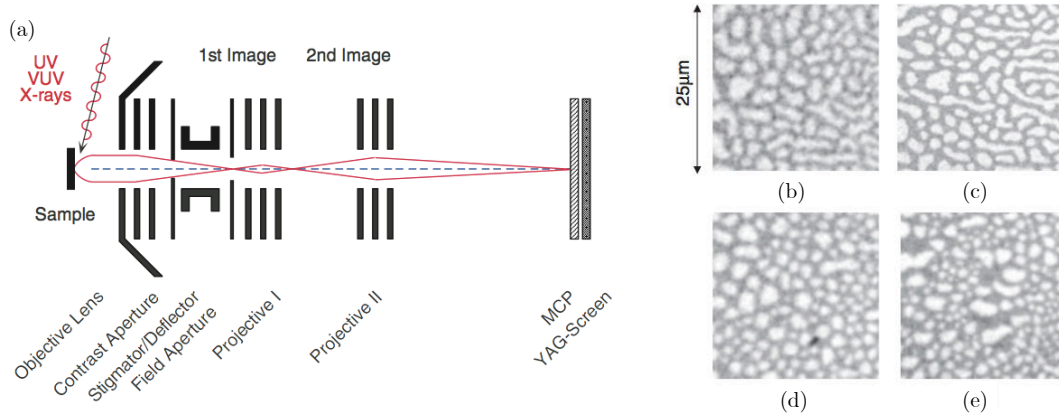


FIGURE 1.7 : **X-PEEM**. (a) Schéma de principe du fonctionnement d'un microscope X-PEEM (adapté de l'article de revue de C. M. Schneider [58]). Les rayons X absorbés proche de l'incidence rasante conduisent à l'émission localisée d'électrons par le matériau, lesquels sont collectés dans un microscope électronique pour obtenir une image. Le nombre d'électrons collectés est en principe directement proportionnel au XMCD. (b), (c), (d) et (e) sont tirés de l'article de J. Choi et collègues, et montrent des domaines magnétiques dans des couches ultra-minces de Fe/Ni à anisotropie perpendiculaire. Les épaisseurs respectives des couches sont (en nombre de monocouches atomiques, dans les parenthèses) (b) Fe (2,9)/Ni(5,5), (c) Fe (3,1)/Ni(8,0), (d) Fe (3,6)/Ni(10,8) et (e) Fe (4,1)/Ni(13,6), ce qui démontre bien la capacité de la technique à étudier les parois de domaines dans les couches ultra-minces.

diffusion inélastique à l'émission d'électrons secondaires, dont le nombre est essentiellement proportionnel à l'absorption, et porte donc la signature du dichroïsme magnétique. Il est alors possible de collecter ces électrons secondaires dans un microscope électronique conventionnel pour former des images et remonter à un contraste magnétique [figure 1.7].

Bien que limitée à l'utilisation de rayons X rasants, le X-PEEM peut permettre d'imager les domaines magnétiques aimantés hors plan dans des couches ultra-minces [59, 60] jusqu'à une dizaine de nanomètres. Cette technique très puissante permet d'atteindre des résolutions meilleures que 50 nm, celle-ci étant principalement déterminée par le microscope électronique [58] utilisé pour la collection, ce qui est bien supérieur aux résolutions optiques obtenues par microscopie Kerr. L'inconvénient principal du X-PEEM est cependant, comme dans le cas du MTXM, que cette technique est à ce jour réservée à l'utilisation d'un rayonnement synchrotron, ce qui interdit tout usage de routine. Les mesures doivent de plus être réalisées sous vide, et requièrent un bon état de surface de l'échantillon.

Il est également possible d'obtenir un contraste magnétique, sans utiliser le XMCD, mais en mesurant directement la polarisation des électrons photoémis [61], qui reflète en effet la densité d'électrons proche du niveau de Fermi, et donc l'aimantation. Cette approche donne des résultats similaires à ceux du X-PEEM en termes d'imagerie, et nous amène à une autre technique qui repose également sur la détection de la polarisation d'électrons, la microscopie électronique à balayage avec analyse de la polarisation, ou SEMPA.

### 1.2.1.3 Microscopie électronique à balayage avec analyse de la polarisation (SEMPA ou spin-SEM)

La microscopie SEMPA est une variante de la microscopie électronique à balayage conventionnelle (SEM). Dans un SEM, un faisceau électronique de haute énergie ( $\sim 1$  keV) focalisé sur la surface d'un échantillon magnétique conduit à l'émission d'électrons secondaires de basse énergie, dont la polarisation est conservée, reflétant ainsi l'aimantation du matériau. L'analyse de la polarisation des électrons secondaires, par exemple avec un polarimètre de Mott [62] ou avec un polariseur à diffraction des électrons de basse énergie [63], peut alors permettre d'imager les domaines magnétiques. D'autre part, du fait du très faible libre parcours moyen des électrons secondaires, la microscopie SEMPA permet d'obtenir une information provenant des seules quelques monocouches atomiques à la surface de l'échantillon [64]. La résolution spatiale est faiblement dégradée par rapport à celle d'un SEM conventionnel, et peut atteindre quelques nanomètres seulement [65]. Le signal de polarisation étant très faible, cette résolution peut-être abandonnée au profit d'une plus grande sensibilité.

Un des intérêts majeurs de la technique est que la détection de la polarisation des électrons peut donner accès aux trois composantes de l'aimantation, moyennant la combinaison d'un rotateur du spin des électrons au détecteur de polarisation [66]. D'autre part, l'analyse en polarisation permet de dissocier les contributions magnétiques du reste du signal, comme la topographie, ce qui permet par exemple de travailler avec des échantillons non-nécessairement plats. Il est aussi généralement possible dans les dispositifs de SEMPA de travailler en variant la température (voir par exemple [67–69]).

Les contraintes imposées par cette technique sont toutefois assez drastiques. Elle requiert bien entendu de travailler sous ultra-vide, mais également avec des échantillons très propres, et où le matériau magnétique est directement exposé. La plupart des échantillons sont ainsi produits *in-situ*, par exemple par déposition [70], ou par clivage à partir de matériaux massifs [67]. Comme dans toutes les techniques de microscopie électronique, il est aussi très difficilement envisageable d'appliquer de forts champs magnétiques.

En résumé, le SEMPA est une technique très perfectionnée, permettant d'imager les trois composantes de l'aimantation au niveau de la surface d'un échantillon avec une résolution nanométrique, mais qui reste réservée à des études relativement poussées, requérant des échantillons dédiés, généralement réalisés *in-situ*.

### 1.2.1.4 Microscopie par électrons de basse énergie polarisés en spin (SPLEEM)

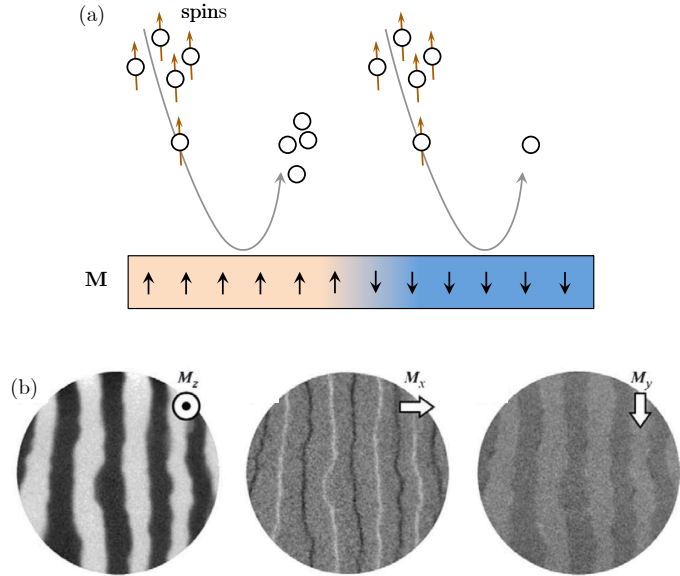
Une technique en apparence proche du SEMPA est la microscopie SPLEEM. Au lieu d'analyser la polarisation des électrons secondaires émis par un matériau magnétique, le SPLEEM étudie la réponse du matériau à un faisceau d'électrons déjà polarisés en spin [71]. Les deux méthodes reposent toutefois sur des principes très différents. Dans un SPLEEM, on mesure la différence de réflectivité d'un matériau en fonction de la polarisation des électrons incidents. Cette différence, dont les origines sont principalement l'interaction d'échange et les collisions électrons-électrons, n'est mesurable que pour des électrons de basse énergie, typiquement de quelques eV seulement. Le faisceau de SEM préalablement polarisé en spin est donc ralenti dans un SPLEEM, juste avant de sonder la surface [71].

Si le SEMPA et le SPLEEM reposent sur des principes physiques très différents, il présentent dans les faits

beaucoup de similarités dans les résultats produits, ainsi que dans les contraintes imposées. Les échantillons doivent être ainsi quasi obligatoirement cristallins, préparés *in-situ* et sous ultra-vide, et l'application d'un champ magnétique externe est difficilement réalisable. En termes de résolution, le SPLEEM atteint typiquement 10 nm, pour des temps d'acquisition de l'ordre de la seconde.

Malgré ces restrictions, qui cantonnent son usage à des échantillons relativement modèles, le SPLEEM présente un intérêt pour ses mesures directes et vectorielles de l'aimantation. Cette technique a en particulier permis récemment de produire des résultats très marquants sur la structure de parois dans des couches à aimantation hors-plan [72–74], reproduits en figure 1.8.

FIGURE 1.8 : **SPLEEM.** (a) Schéma d'illustration du principe du SPLEEM. La surface a une réflectivité plus grande pour les électrons incidents dont le spin correspond aux électrons minoritaires du matériau. (b) Images ( $8\ \mu\text{m}$ ), obtenues par SPLEEM, de domaines dans une couche de Cu|Ni(2 ML)|Fe(2,5 ML). Tirées de l'article de Chen et collègues [73]. Le fait que les parois soient très larges dans ce matériau permet d'imager leur structure et leur chiralité.



### 1.2.1.5 Techniques de microscopies électroniques à transmission

Une autre façon relativement simple d'utiliser des électrons pour sonder un matériau magnétique est de tirer profit de la force de Lorentz, qui dévie la trajectoire des particules chargées dans un champ magnétique. De façon assez générale, si on considère les électrons sous une approche ondulatoire, la force de Lorentz se traduit par l'accumulation d'une phase  $\phi_e$  pendant la traversée d'un champ magnétique  $\mathbf{B}$ , dont le gradient est donné sur une épaisseur mince  $t$  par [75]

$$\mathbf{grad}(\phi_e) = \frac{t}{\hbar} e \mathbf{B} \times \mathbf{u} \quad (1.3)$$

où  $\mathbf{u}$  est le vecteur unitaire de la direction de propagation des électrons. Diverses techniques de microscopie électronique à transmission, qualifiées de « Lorentz », sont présentées par exemple dans l'ouvrage de Hubert et Schäfer [16], ou dans la revue de Chapman et Scheinfein [75] et reposent d'une certaine façon toutes sur la mesure de cette phase. Elles ne permettent donc pas de mesurer l'aimantation directement, mais le champ magnétique induit par celle-ci. On a toutefois une information provenant directement du champ dans le volume du matériau, à la différence des techniques de mesure du champ de fuite que nous présenterons dans un second temps.

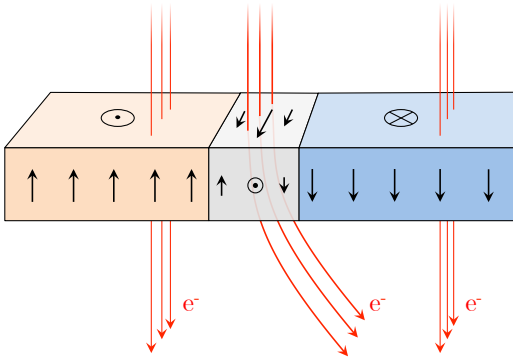


FIGURE 1.9 : **Microscopie « Lorentz »**. Schéma d'illustration du principe de la microscopie électronique dite « Lorentz » en transmission, pour imager les parois de Bloch dans les films ultra-minces ferromagnétiques. En traversant la paroi, les électrons sont déviés par le champ interne à la paroi de domaine. Une telle mesure nécessite donc des parois suffisamment larges au regard de la sensibilité du microscope.

Il est intéressant de souligner que dans l'équation (1.3) il apparaît clairement que l'on ne peut sonder que des composantes du champ orthogonales à la propagation des électrons. De ce fait, la microscopie Lorentz n'est pas vraiment adaptée à l'observation de domaines dans des couches à aimantation hors-plan, comme souligné dans la référence [16]. Ce problème peut tout de même être contourné en inclinant les échantillons à mesurer. De plus, la structure interne des parois de Bloch peut donner lieu à une déflexion mesurable du faisceau, même dans les couches ultra-minces, comme illustré en figure 1.9. Ceci, combiné à des rotations de l'échantillon, a notamment été utilisé dans l'étude récente de Benitez et collègues [76], pour imager des parois de domaine dans un film ultra-mince, et mettre en évidence la structure interne des parois, en démontrant au passage que la technique était suffisamment sensible.

**Holographie électronique** Un des pans de la microscopie Lorentz à mettre en avant pour son intérêt quantitatif est l'holographie électronique [16, 77, 78]. Cette approche consiste à remonter directement à l'information contenue dans la phase  $\phi_e$  du faisceau d'électrons en le faisant interférer avec une référence, comme par exemple une fraction du faisceau qui n'a pas traversé l'échantillon. L'hologramme obtenu est un réseau de franges correspondant à l'interférence entre le faisceau sonde et la référence, d'incidences différentes. Ces franges sont distordues par une modulation supplémentaire induite par la phase d'origine magnétique décrite par l'équation (1.3), à laquelle il est possible de remonter par des transformées de Fourier.

La sensibilité des techniques d'holographie dépend de la résolution en phase, et rentre donc dans un compromis avec la résolution spatiale souhaitée [77]. Il est en principe possible d'imager par holographie électronique des parois dans les couches ultra-minces, de même qu'en microscopie de Lorentz conventionnelle. Par exemple, une étude récente utilisant des échantillons vus en coupe a montré qu'il est possible d'y visualiser des domaines magnétiques [79].

Les techniques de microscopie de Lorentz présentent trois inconvénients principaux en contrepartie de leur résolution nanométrique. Elles requièrent des échantillons dédiés, fabriqués sur des membranes nécessairement transparentes aux électrons. Comme dans toutes les techniques de microscopie électronique, elles nécessitent

un travail sous vide, mais il est surtout difficile d'appliquer un champ magnétique fort à l'échantillon, ce qui dévierait les faisceaux. Enfin, et comme mentionné plus haut, on n'a pas accès à toutes les composantes du champ magnétique, et l'information est moyennée sur toute la traversée de l'échantillon, ce qui n'est pas la configuration la plus favorable pour imager des couches à aimantation hors-plan.

### 1.2.1.6 Microscopie magnétique par électrons balistiques (BEMM)

La microscopie magnétique par électrons balistiques (BEMM) a été développée à la fin des années 1990 par Rippard et Buhrman [80, 81] et repose sur l'utilisation d'un microscope à émission d'électrons balistiques (BEEM) [82]. Le BEEM est une modification du microscope à effet tunnel à (STM), pour étudier des matériaux plus profondément qu'à la surface. Dans une expérience de BEEM, des électrons « chauds » (quelques eV au dessus du niveau de Fermi dans le métal) sont injectés par effet tunnel dans le métal à sonder. Une barrière de potentiel suffisamment haute placée après le métal (généralement une barrière Schottky) permet de filtrer les électrons balistiques, c'est-à-dire, qui traversent le matériau sans perdre d'énergie. Cette petite fraction  $I_c$  du courant tunnel  $I_t$  est collectée et leur comparaison permet de remonter à des informations dans le volume. Ce principe est représenté en figure 1.10(a).

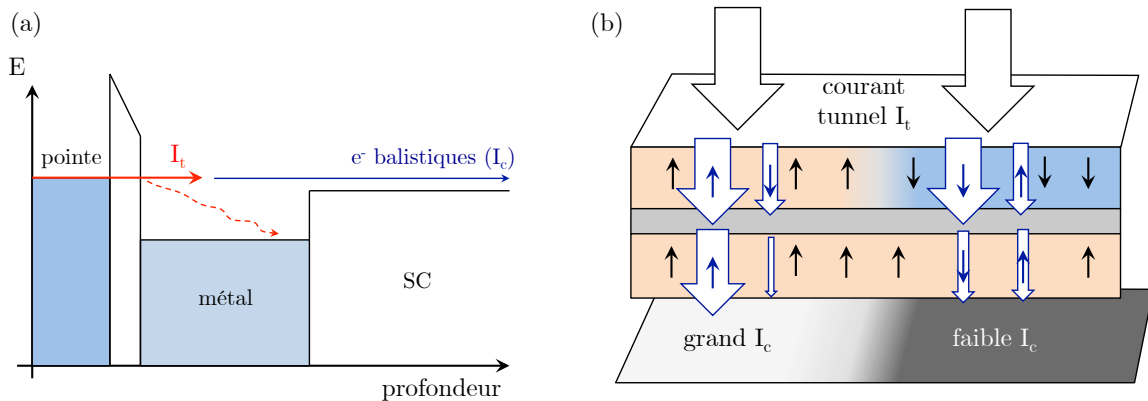


FIGURE 1.10 : **BEMM**. (a) Schéma d'énergie décrivant le principe de fonctionnement d'un microscope BEEM (comme décrit dans le papier initial de Kaiser et Bell [82]). Une différence de potentiel entre la pointe de STM et le métal à sonder permet d'injecter des électrons chauds dans le matériau. Les électrons balistiques sont ensuite filtrés par une barrière passe-haut, typiquement une barrière de Schottky (jonction métal-semiconducteur). (b) Schéma illustrant le principe de fonctionnement du BEMM pour imager les parois dans les couches à aimantation perpendiculaire. Les électrons chauds injectés par effet tunnel (dépolarisés) sont polarisés par la traversée de la première couche magnétique. La seconde couche sert d'analyseur, en diffusant les électrons dont le moment est antiparallèle à l'aimantation. Le courant balistique (schématisé par les flèches aux contours bleus) est donc plus fort dans le cas de couches parallèles que dans le cas de couches anti-parallèles.

Dans le cas d'une expérience de BEMM, le matériau étudié est généralement une bicouche magnétique. Le courant d'électrons chauds se retrouve polarisé après la première couche magnétique, soit par diffusion inélastique des électrons correspondant à la polarisation minoritaire dans le matériau, soit par réflexion de ceux-ci aux interfaces. La seconde couche est ainsi l'équivalent d'un analyseur de polarisation magnétique, comme schématisé en figure 1.10(b). Le courant  $I_c$  collecté est ainsi beaucoup plus important si les deux couches magnétiques sont aimantées parallèlement que si elles ont des aimantations opposées, tout comme dans une valve de spin. Quelques épaisseurs atomiques suffisent à obtenir un contraste de BEMM [81], avec une résolution de l'ordre de quelques nanomètres.

Moyennant l'utilisation d'un échantillon dédié à cette technique, il est ainsi possible d'observer des parois dans les couches ultra-minces, à aimantation perpendiculaire, ainsi que leur structure (Bloch ou Néel) comme par exemple dans l'étude de A. Bellec et collègues [83]. Cette technique a l'avantage de posséder une très bonne résolution spatiale, tout en demeurant beaucoup plus simple à mettre en œuvre que le STM polarisé en spin que nous allons présenter ensuite. Toutefois, elle requiert des échantillons transparents aux électrons chauds, ce qui interdit notamment l'utilisation de couches comportant du platine, très utilisé dans de nombreuses multicouches magnétiques, comme souligné dans la référence [83]. D'autre part, la technique étant une technique de balayage extrêmement résolue, le champ des images excède rarement quelques micromètres carrés, ce qui peut-être un inconvénient dans des échantillons présentant de très faibles densités de parois.

### 1.2.1.7 Microscopie tunnel à balayage polarisée en spin (SP-STM)

Le SP-STM est une autre variante du STM, où la pointe d'où est issu le courant électronique présente un ordre magnétique (ferromagnétique ou anti-ferromagnétique). Le courant tunnel est de cette façon directement polarisé en spin. En conséquence, la probabilité de l'effet tunnel qui dépend de la densité d'états dans le matériau, pour cette polarisation en spin, reflète l'aimantation à l'interface. Ce principe est décrit en figure 1.11(a) et (b). Le SP-STM est la technique offrant la meilleure résolution, avoisinant  $1\text{\AA}$ , et permet d'accéder à toutes les composantes de l'aimantation à la surface, pour peu que l'orientation du moment de la pointe soit modifiée. Ainsi, le SP-STM peut être considéré comme la technique ultime pour l'imagerie magnétique.

Cette technique très impressionnante a ainsi permis de très nombreuses avancées sur des questions fondamentales au cours des dernières années, dont un certain nombre sont présentées dans l'état de l'art de 2009 de R. Wiesendanger [84]. En ce qui concerne particulièrement l'étude des parois dans les couches ultra-minces, on peut par exemple citer l'étude de parois de Bloch à  $360^\circ$  dans Fe/W par le groupe de Wiesendanger à Hambourg [85], dont est extraite la figure 1.11(c). Cet exemple illustre les performances de la méthode, offrant une mesure à la fois vectorielle et très résolue de la paroi. Le SP-STM permet d'aller cependant bien plus loin que l'étude de parois de domaines, et a notamment ouvert la voie sur l'étude expérimentale de skyrmions magnétiques, des bulles magnétiques ayant une charge topologique [86].

La contrepartie de toutes ces propriétés exceptionnelles sont des contraintes extrêmes. L'utilisation du SP-STM est restreinte à des échantillons cristallins, conducteurs, dont l'état de surface est parfait, et en conséquence généralement fabriqués in-situ et sous ultra-vide. D'autre part, la plupart des mesures doivent être réalisées à



basse température. C'est en outre une technique extrêmement difficile à maîtriser, dont seuls quelques groupes dans le monde disposent à l'heure actuelle. Le SP-STM est donc réservé à des études modèles et a plus vocation à apporter un éclairage sur des questions fondamentales qu'à étudier de manière systématique des échantillons nano-magnétiques.

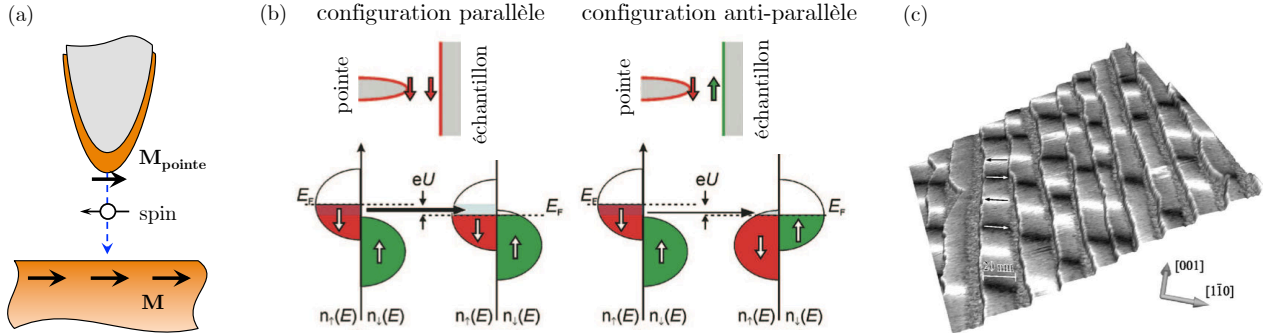


FIGURE 1.11 : **SP-STM**. (a) Schéma de principe du SP-STM. La probabilité d'effet tunnel entre la pointe et l'échantillon dépend des orientations respectives de leur aimantation. (b) Détail du principe du SP-STM. En appliquant une tension  $U$ , on décale le niveau de Fermi  $E_F$  entre les deux échantillons. Suivant que les spins majoritaires  $\downarrow$  de la pointe correspondent aux spins majoritaires ou minoritaires du matériau, la probabilité de l'effet tunnel sera différente. On aura donc un contraste de courant tunnel. *Schéma adapté de la référence [84]*. (c) Image tirée de l'article de Kubetzka et collègues [85], de parois de Bloch dans une couche de Fe sur W(110). La taille de l'image est de  $200 \times 200 \text{ nm}^2$ . La pointe est ici aimantée parallèlement au plan de la couche et est donc sensible uniquement au moment magnétique de la paroi de domaine (en blanc et noir).

Afin d'étudier plus simplement des échantillons "standards", avec une résolution spatiale qui soit tout de même meilleure qu'en microscopie Kerr, une approche consiste à mesurer les champs de fuite générés par l'aimantation, à la surface du matériau. Les techniques de mesure du champ de fuite sont en principe beaucoup moins invasives que les techniques de mesure directe d'aimantation, puisque la mesure est réalisée hors de l'échantillon.

## 1.2.2 Imagerie du champ magnétique de fuite de la paroi

### 1.2.2.1 Décorer la surface - méthode de Bitter

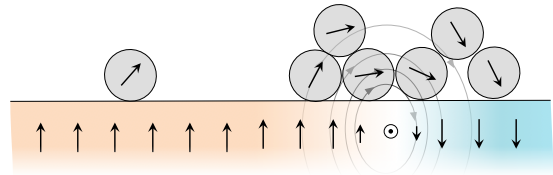
La méthode de Bitter consiste à décorer la surface d'un matériau ferromagnétique avec de petites particules aimantées, qui vont s'agréger dans les zones de fort champ et donc au niveau des parois de domaine, comme illustré sur le schéma de la figure 1.12. Comme nous l'avons mentionné plus tôt, c'est la première technique qui a permis en 1931 d'imager des parois de domaines [27, 28].

Si elle permet en principe d'observer les parois dans les couches ultra-minces, et bien qu'elle soit encore utilisée dans certaines études encore aujourd'hui (voir par exemple [87, 88]), la méthode de Bitter présente surtout un intérêt conceptuel et historique. En effet, elle ne permet pas vraiment d'imager les parois de manière

dynamique, seulement de révéler leur présence, et l'interprétation des figures obtenues par la méthode de Bitter n'est pas toujours évidente [16]. Pour simplement détecter la présence de parois, la microscopie Kerr est donc bien plus couramment utilisée dans les échantillons ultra-minces.

Il est tout de même intéressant de noter que la résolution de cette technique très simple n'est limitée que par la taille des particules utilisées, moyennant l'utilisation de techniques sophistiquées pour leur détection, telles que l'AFM ou la microscopie électronique [88]. On peut alors atteindre quelques dizaines de nanomètres.

FIGURE 1.12 : **Méthode de Bitter.** Schéma d'illustration du principe de la méthode de Bitter. Les parois dans les films minces à aimantation hors du plan de la couche sont à l'origine d'un champ magnétique de fuite. En décorant la surface avec des particules magnétiques, celles-ci vont avoir tendance à s'agglomérer au niveau des parois (une couche aimantée uniformément ne produit pas de champ de fuite).



### 1.2.2.2 Techniques de mesure de flux magnétique à balayage

Une idée assez naturelle qui survient dès lors que l'on souhaite mesurer les champs de fuite à la surface d'un échantillon est d'utiliser un simple détecteur de champ, tel qu'une sonde à effet Hall, et de le déplacer pour cartographier le champ. Cette idée, qui a été poursuivie bien avant le développement des techniques de microscopie de champ proche [89, 90], a depuis lors pris un nouvel essor [91].

Les deux principales techniques utilisables sont la microscopie à balayage de sonde de Hall, et l'utilisation de micro-SQUID (pour Superconducting QUantum Interference Device), voire de nano-SQUID. Ces deux techniques sont présentées en figure 1.13.

**Microscopie à balayage de sonde de Hall (SHPM)** Un SHPM consiste en une sonde de Hall, lithographiée sur une pointe [figure 1.13(c) et (d)], et déplacée au dessus d'un matériau pour en cartographier le champ de fuite. En principe, la sonde de Hall a une réponse linéaire en champ magnétique, dont la sensibilité dépend du matériau utilisé et peut varier de l'ordre de  $\sim 1 \text{ mT}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour des sondes fonctionnant à température ambiante, par exemple en bismuth, à  $\sim 10^{-4} \text{ mT}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour les sondes cryogéniques en GaAs/AlGaAs. Dans la pratique, il est en réalité assez difficile d'être quantitatif car le champ n'est en général pas homogène sur toute la surface de la sonde [92].

Un des principaux atouts de la SHPM est son extrême versatilité, permettant d'étudier à peu près tout type d'échantillon dans n'importe quelles conditions, que ce soit sous air, à température ambiante ou cryogénique, ou bien en appliquant des champs très intenses ou des courants. Malheureusement, la résolution de la SHPM est très limitée, tout comme le SQUID d'ailleurs. Ces techniques ne mesurent en effet que le flux du champ magnétique au travers de la surface de la sonde, laquelle peut difficilement atteindre moins que  $50 \text{ nm}^2$  [92–95].

Dans les faits, la résolution est essentiellement limitée par un compromis entre distance à l'échantillon  $d$  et surface de la sonde  $S$ , typiquement  $\Delta_{\text{rés.}} \sim \sqrt{d^2 + S}$ , et est donc à l'heure actuelle au mieux de l'ordre quelques centaines de nanomètres.

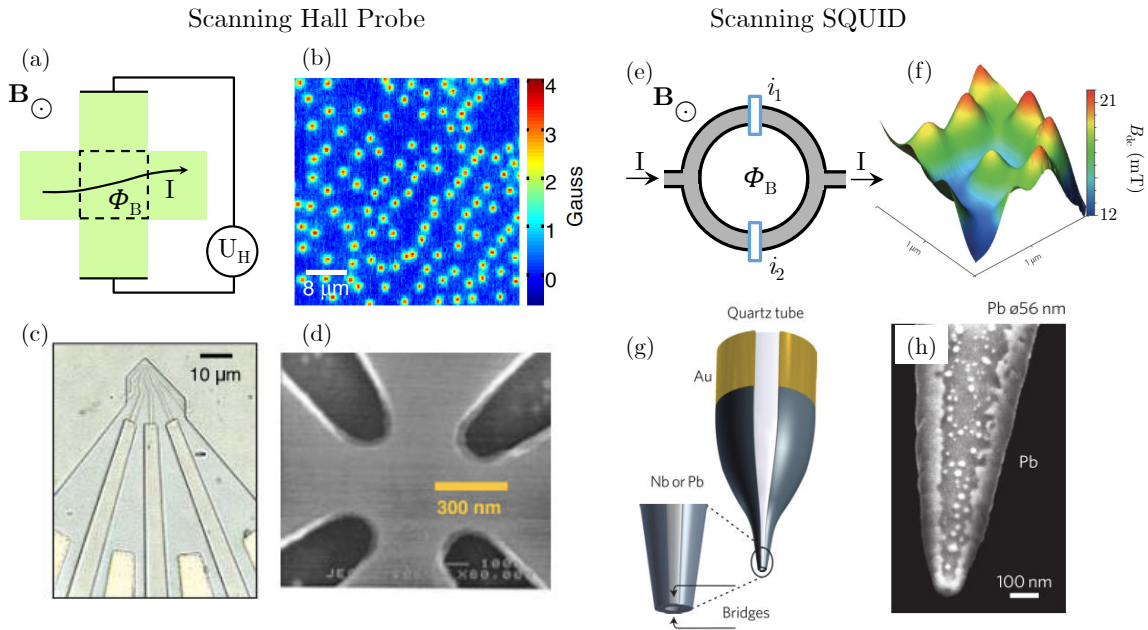


FIGURE 1.13 : **SHPM et nano-SQUID.** (a), (b), (c) et (d) sont adaptées de la thèse de J. Guikema [92], et (f), (g) et (h) de l'article de Vasyukov *et al.* [100]. (a) Schéma de principe du SHPM. Le passage d'un courant  $I$  dans une de branches d'une croix de Hall donne lieu à une tension  $U_H$  aux bornes de l'autre branche, proportionnelle à  $B$ . La zone pointillée correspond à la surface sensible (b) Image de vortex supraconducteurs dans un échantillon de YBCO par SHPM. (c) et (d) sont deux images d'une sonde de Hall fabriquée en GaAs|AlGaAs dans le groupe de K. Moler à Stanford. (e) Illustration du principe d'un SQUID. Le courant qui circule dans la boucle est imposé par le flux du champ magnétique  $\Phi_B$  et par les jonctions Josephson (en blanc). Ceci conduit à une tension aux bornes du SQUID, dépendante du champ magnétique de manière très sensible. (f) Image ( $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ ) de vortex supraconducteurs dans un échantillon de Nb, obtenue par nano-SQUID. (g) Schéma des nano-SQUIDS de l'équipe de E. Zeldov, fabriqués à partir de fibres de quartz étirées et pouvant atteindre des surfaces sensibles de seulement  $\sim 50\ \text{nm}$ . (h) Image en microscopie électronique d'un tel nano-SQUID, fabriqué par dépôt de Pb.

**Micro-SQUID et nano-SQUID** De même que la sonde à effet Hall, le SQUID est un capteur de flux magnétique, qui constitue probablement le détecteur de champ magnétique avec la plus grande sensibilité, typiquement de l'ordre du  $\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ , où  $\Phi_0 = h/2e$  désigne le quantum de flux. Il a donc naturellement été tenté de développer des SQUID à balayage pour l'imagerie [92, 96–98]. L'exemple le plus marquant en date est certainement la réalisation d'un nano-SQUID par déposition de supraconducteur sur un capillaire de quartz étiré, dont la surface de détection mesure une cinquantaine de nanomètres, par Vasyukov et collègues [99, 100], pour une sensibilité de l'ordre de  $50\ \text{n}\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$  [figure 1.13(g) et (f)].

La limitation de ces systèmes n'est clairement pas la sensibilité, permettant en principe détecter le moment magnétique d'électrons uniques. Cependant, outre les contraintes de cryogénie (température  $< 10\ \text{K}$ ) imposées par la supraconductivité, le problème demeure toujours la résolution spatiale de la technique, qui même avec un nano-SQUID, reste limitée à plus d'une centaine de nanomètres [100]. Il est à souligner que le nano-SQUID de Vasyukov et collègues permet, à la différence des SQUIDS classiques, l'application d'un champ externe supérieur au Tesla.

En conclusion, malgré des développements prometteurs, les deux techniques que sont le nano-SQUID et la SHPM restent encore peu intéressantes pour le problème spécifique qu'est l'imagerie de parois de domaine dans les couches ultra-minces. En effet, bien qu'elles permettent aisément de mesurer les champs de fuites de ces objets (typiquement de l'ordre du milliTesla à 100 nm de la surface), leur résolution reste comparable à celle de la microscopie Kerr, qui est en regard beaucoup plus simple à mettre en œuvre et profite en plus d'une dynamique bien supérieure.

### 1.2.2.3 Microscopie à force magnétique (MFM)

La microscopie à force magnétique (MFM) est un dérivé de la microscopie à force atomique [103] (AFM), permettant de mesurer le champ magnétique à la surface d'un échantillon. Le principe de la MFM est de remplacer la pointe conventionnelle d'AFM par une pointe magnétique, dont l'interaction avec le champ de fuite de l'échantillon va conduire à une force dérivant de l'énergie potentielle :  $\mathcal{E}_{\text{MFM}} = -\mu_0 \int_{\text{pointe}} \mathbf{M}_{\text{pointe}} \cdot \mathbf{H}_{\text{échantillon}} dV$ . De la même manière qu'avec un AFM conventionnel, il est possible de mesurer l'effet de cette force, point par point, et ainsi de reconstruire des cartographies contenant une information sur le champ de fuite de l'échantillon [figure 1.14].

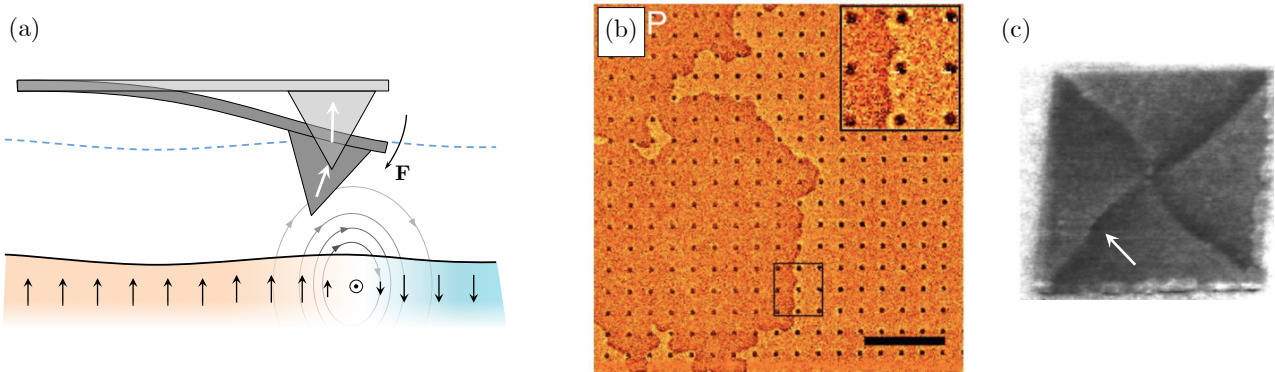


FIGURE 1.14 : **MFM**. (a) Schéma illustrant le principe de la MFM. Une pointe magnétique (dont le moment est représenté par la flèche blanche) dans un gradient de champ subira une force, dont la mesure permet de remonter à une information sur le champ de fuite. (b) Parois de domaine imagées en MFM dans une bicouche de Pt(1,8)|Co(0,6)<sub>2</sub> à aimantation perpendiculaire. Barre d'échelle : 4 μm. La figure est adaptée de l'article de Metaxas et collègues [101], et prouve les capacités de la technique. À noter cependant qu'ici, les parois sont piégées par des plots magnétiques servant de défauts artificiels de dimensions nanométriques (points noirs), ce qui limite la traction par la pointe de MFM. Généralement ce problème de traction empêche de réaliser des images satisfaisantes. (c) Exemple de parois déformées par la pointe de MFM dans un vortex carré de permalloy, de 2 μm de côté. La déformation est indiquée par la flèche blanche. L'image est adaptée de [102] et illustre l'aspect perturbatif de la méthode.

Ne requérant pas de préparation particulière des échantillons et permettant d'obtenir des images avec une résolution de l'ordre de 20 nm (voir par exemple [104]) dans la plupart des environnements, la MFM s'est imposée comme technique de caractérisation usuelle des échantillons nano-magnétiques, au même titre que la microscopie Kerr [16, 105], et la majorité des laboratoires de magnétisme en est équipée.

En plus d'être résolue, la MFM est une technique sensible, et a notamment permis d'imager le cœur de vortex ferromagnétiques dans des disques de permalloy [106]. Les vortex ferromagnétiques sont des structures quasi-ponctuelles dont le champ de fuite est relativement comparable en intensité à celui des parois de domaines dans les films ultra-minces, ce qui indique que la MFM devrait être capable d'imager de telles structures.

L'inconvénient majeur de la MFM, toutefois, provient de la pointe qui est magnétique, et dont le champ influence aussi l'échantillon. Pour être suffisamment sensible, il faut utiliser des pointes dont l'aimantation est assez grande, ce qui perturbe d'autant la mesure. Ainsi, la pointe du MFM aura tendance à tirer des parois de domaines dans les films ultra-minces pendant une image. Dans les faits, cette limitation peut être contournée pour produire des images de parois de domaines dans des films ultra-minces aimantés perpendiculairement. On peut par exemple citer l'étude de Bellec et collègues [83], où l'auto-organisation des parois en multi-domaines leur confère une certaine « rigidité », ou encore celle de Metaxas *et al.* [101], dont est extraite la figure 1.14(b), où les parois sont piégées par des zones d'ancrage artificielles. Il n'en demeure pas moins que dans la plupart des échantillons ce problème est souvent rédhibitoire.

Le second inconvénient de la MFM est qu'il est dans la pratique très difficile de déduire directement et de manière quantitative le champ de fuite de l'échantillon à partir des images observées. La grandeur mesurée est en effet la force exercée sur la pointe magnétique. Déduire le champ de fuite de la mesure de force suppose donc une modélisation très précise de pointe, ainsi que de son interaction avec le champ de fuite [102, 107, 108], ce qui se révèle en général un problème complexe.

En résumé, la MFM est une technique très puissante puisqu'à la fois résolue, simple à mettre en place et très versatile, mais qui souffre de deux inconvénients majeurs : un manque d'information quantitative et une mesure qui perturbe les échantillons. Pour l'étude des parois de domaine dans les films ultra-minces, ce dernier point est en particulier très problématique.

### 1.2.3 Bilan

Nous avons essayé de rassembler dans le tableau 1.1 de manière synthétique les conclusions de la discussion précédente sur les différentes techniques d'imagerie disponibles. Chaque technique offrant différents avantages, au prix de contraintes qui lui sont propres, le choix d'une technique sera donc fait en fonction du problème à étudier et de la nature des échantillons. Par exemple, malgré ses performances, il est inenvisageable d'utiliser un SP-STM pour étudier un échantillon « usuel » de l'industrie, préparé par pulvérisation *ex-situ*, et recouvert de couches de protection.

En regard de ces avantages, nous avons dans le tableau 1.1 choisi de mettre en avant deux types de techniques :

- en jaune : les techniques les plus performantes, en termes de résolution spatiale, ou en termes d'information acquise sur le matériau. Tout d'abord les techniques de XMCD, qui permettent avec une excellente résolution d'accéder aussi à une information spécifique à chaque élément présent. Ensuite, bien sûr, le SP-STM, technique la plus résolue, permettant d'aller sonder vectoriellement le magnétisme atome par atome ;
- en bleu : les techniques versatiles, permettant d'étudier en routine les échantillons du nano-magnétisme. Ces techniques sont essentiellement la microscopie Kerr, et la MFM. Elles constituent les techniques usuelles de caractérisations des échantillon.

En regard des critères que nous avons défini au début de cette partie – résolution, sensibilité et versatilité – les techniques telles que le SP-STM ou les techniques reposant sur le XMCD sont très intéressantes, mais restent cantonnées à des échantillons spécifiques. La seule technique qui pourrait sans contraintes remplir ces trois critères serait la MFM. Malheureusement, pour les échantillons ultra-minces, la MFM perturbe les parois. En effet, les pointes utilisées pour avoir une sensibilité suffisante exercent en retour une force sur les parois, ce qui les déforme et rend impossible leur imagerie.

## 1.3 Conclusion

Pour étudier les parois de domaine, il serait donc intéressant de disposer d'une technique de mesure de champ de fuite très résolue, telle que la MFM, et ayant les mêmes atouts de versatilité et de sensibilité, mais qui ne perturberait pas l'échantillon. Il serait en prime idéal d'obtenir des cartographies quantitatives du champ de fuite. Dans le chapitre suivant, nous allons montrer que la microscopie à balayage de centre NV du diamant offre justement toutes ces caractéristiques.

Technique	Grandeur étudiée	Résolution	Temps d'acquisition	Quantitative	Versatilité (mesures possibles)	Contraintes supplémentaires
MOKE	M	300 nm :(	ms – ns	difficilement	+++ ( <i>T, P, H, I</i> )	-
MTXM	M	~ 20 nm	~ 1 s	oui	-- ( <i>T, H, I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• synchrotron</li> <li>• ultra-vide</li> <li>• échantillons dédiés (transparents aux X mous)</li> </ul>
X-PEEM	M	~ 50 nm	~ 10 ms	oui	+ ( <i>T, I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• synchrotron</li> <li>• ultra-vide, <math>\mathbf{H}</math></li> <li>• éch. conducteur</li> </ul>
SEMPA * SPLEEM	M (vectoriel)	~ 5 nm * 10 nm	~ 10 s – 1 min * 1 s	oui	-- ( <i>T, (I)</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• échantillons fabriqués <i>in-situ</i></li> <li>• ultra-vide, <math>\mathbf{H}</math></li> <li>• éch. conducteur</li> </ul>
L-TEM * Hologr. $e^-$	$B_{\perp}$ (dans matière)	~ 1 nm	~ 1 s	non * oui	- ( <i>T, H, I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• bon état de surface</li> <li>• ultra-vide</li> <li>• éch. conducteur</li> <li>• transparence aux <math>e^-</math></li> </ul>
BEMM	M	~ 1 nm	~ 10 min	oui	--- ( <i>T, H</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• éch. conducteur</li> <li>• transparence aux <math>e^-</math> "chauds" (qq. eV)</li> </ul>
SP-STM	M (vectoriel, par atome)	~ 1 Å	~ 10 min	oui	--- ( <i>(T), H</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• échantillons "parfaits", fabriqués <i>in-situ</i></li> <li>éch. conducteur</li> </ul>
SHPM	B	$\gtrsim 100$ nm :(	~ 10 min	difficilement (sensible à $\phi(B)$ )	++ ( <i>T, P, H, I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• sonde encombrante (circuit)</li> </ul>
nano-SQUID	B	$\gtrsim 100$ nm	~ 10 min	difficilement (sensible à $\phi(B)$ )	+/- ( <i>(T), (H), I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• cryogénie</li> </ul>
MFM	B	~ 30 nm	~ 10 min	non :(	+++ ( <i>T, P, H, I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• perturbation par la pointe magnétique</li> </ul>
NV	B	$\gtrsim 50$ nm	~ 10 min	oui	+++ ( <i>T, P, (H), I</i> )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• <math> \mathbf{B}  &lt; 10</math> mT</li> </ul>

TABLE 1.1: **Récapitulatif** : comparaison des différentes techniques d'imagerie pour le nano-magnétisme permettant d'imager les parois de domaine dans les couches ultra-minces ferromagnétiques. **Abréviations** : *M* désigne l'aimantation, *B* le champ magnétique. *H, T, P* et *I* indiquent la possibilité de travailler respectivement sous champ, température ou pression variable, ou en appliquant un courant. Les parenthèses indiquent des contraintes supplémentaires en regard de ces biais.  $\phi(B)$  désigne le flux du champ magnétique au travers d'une surface. Toutes les valeurs numériques sont données à titre indicatif, en vue d'avoir une comparaison synthétique entre les techniques, et représentent donc plus des ordres de grandeur. NV désigne la microscopie à balayage de centre NV qui sera introduite au chapitre suivant et qui est au cœur de cette thèse.

# Imagerie d'une paroi de domaine avec un microscope à centre NV

## Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Centre NV du diamant</b> . . . . .	<b>44</b>
2.1.1	Centres colorés du diamant et propriétés optiques du centre NV . . . . .	44
2.1.2	Résonance magnétique détectée optiquement . . . . .	46
2.1.3	Application à la magnétométrie DC . . . . .	48
<b>2.2</b>	<b>Microscope à balayage de centre NV</b> . . . . .	<b>51</b>
2.2.1	Dispositif expérimental . . . . .	52
2.2.2	Fonctionnalisation du microscope . . . . .	55
2.2.3	Caractérisation de la sonde de champ magnétique . . . . .	56
2.2.4	Résolution spatiale de l'instrument . . . . .	59
<b>2.3</b>	<b>Imagerie d'une paroi de domaine par microscopie NV</b> . . . . .	<b>61</b>
2.3.1	Échantillon . . . . .	61
2.3.2	Cartographie complète de champ . . . . .	63
2.3.3	Mode d'imagerie rapide : « iso-B » . . . . .	65
<b>2.4</b>	<b>Sauts de Barkhausen thermiquement activés</b> . . . . .	<b>67</b>
2.4.1	Observation de sauts de paroi . . . . .	67
2.4.2	Influence du laser . . . . .	69
2.4.3	Modèle . . . . .	73
2.4.4	Exploitation pour cartographier les défauts . . . . .	78
<b>2.5</b>	<b>Conclusion</b> . . . . .	<b>80</b>

---



Dans ce chapitre nous introduisons une nouvelle technique pour l'imagerie du magnétisme à l'échelle nanométrique : la *microscopie à balayage de centre NV*. Cette technique repose sur l'utilisation comme magnétomètre atomique du centre azote-lacune ou NV (de l'anglais *nitrogen-vacancy*) du diamant, dont nous introduirons succinctement les propriétés clés dans une première partie (§2.1). Après avoir décrit le dispositif expérimental (§2.2), nous montrerons comment cette technique permet d'imager des parois de domaines magnétiques dans des couches ultra-minces, avec une résolution de l'ordre de  $\sim 50$  nm, à température ambiante (§2.3).

Enfin, nous utiliserons le microscope à centre NV pour étudier les sauts de Barkhausen thermiquement activés d'une paroi entre deux sites de piégeage, et cartographier les positions stables de la paroi sur des échelles de l'ordre de la dizaine de nanomètres (§2.4). Nous verrons en particulier comment un échauffement local du matériau permet de piéger une paroi, en diminuant localement son énergie intrinsèque  $\sigma_0$ .

## 2.1 Centre NV du diamant

### 2.1.1 Centres colorés du diamant et propriétés optiques du centre NV

Le diamant est une variété allotropique cristalline du carbone ayant les propriétés d'un matériau semi-conducteur à grand gap (5.5 eV). De fait, aux longueurs d'onde optiques (de l'ordre de 1 à 3 eV), c'est un matériau que l'on peut supposer parfaitement transparent. Cependant, la présence d'impuretés dans le matériau peut créer des pièges pour les électrons (ou les trous), ce qui se traduit par la présence de niveaux d'énergie discrets à l'intérieur du gap. Ces niveaux donnent lieu à des transitions optiques supplémentaires, allant dans des cas de dopage très important jusqu'à donner une teinte colorée et visible à l'œil au diamant, comme présenté en figure 2.1(a), (b) ou (c).

Si plus de cinq cents défauts ont à ce jour été répertoriés [109], une impureté en particulier nous intéressera dans ce manuscrit, à savoir le centre azote-lacune (NV), lequel donne une teinte rosée au cristal comme celle du diamant dit « Hortensia » présenté en figure 2.1(c). Le centre NV correspond au remplacement d'un atome de carbone de la maille de diamant par un atome d'azote (N), azote à côté duquel un second atome de carbone est manquant (V) [cf. figure 2.1(d)]. Le centre NV du diamant existe suivant plusieurs états de charge, en fonction de la position du niveau de Fermi [110–112]. Nous ne nous intéresserons dans ce manuscrit qu'à l'état de charge  $NV^-$ , qui en réalité possède deux électrons non appariés. Seul cet état de charge possède les propriétés de spin permettant de l'utiliser comme magnétomètre<sup>1</sup>. Dans toute la suite du manuscrit, la dénomination centre NV désignera donc implicitement l'état de charge  $NV^-$ .

Les niveaux d'énergie du défaut, schématisés en figure 2.1(e), sont très éloignés des bandes de valence et de conduction, si bien que l'on peut considérer **le centre NV comme un atome artificiel** niché dans la matrice de diamant. En particulier, il est possible d'induire des transitions dipolaires électriques entre les états fondamental et excité du défaut. Ces transitions très fortement élargies ( $\sim 200$  nm de largeur de raie) du fait

---

1. En réalité, le centre NV alterne entre les deux états de charge  $NV^0$  et  $NV^-$ , sur une échelle de temps de l'ordre de la milliseconde. Cependant, cette échelle de temps demeure très grande devant les temps des mécanismes utilisés pour manipuler et lire l'état du spin du NV, qui seront présentés dans la suite. Ainsi le passage par l'état  $NV^0$  pourra simplement être ignoré dans nos expériences.

d'un couplage aux phonons<sup>2</sup> conduisent à une absorption décalée autour de 570 nm et une émission dans le rouge, autour de 680 nm, tandis que la raie *zéro phonon* (ZPL) se situe autour de 637 nm. Des spectres typiques sont présentés en figure 2.2(b).

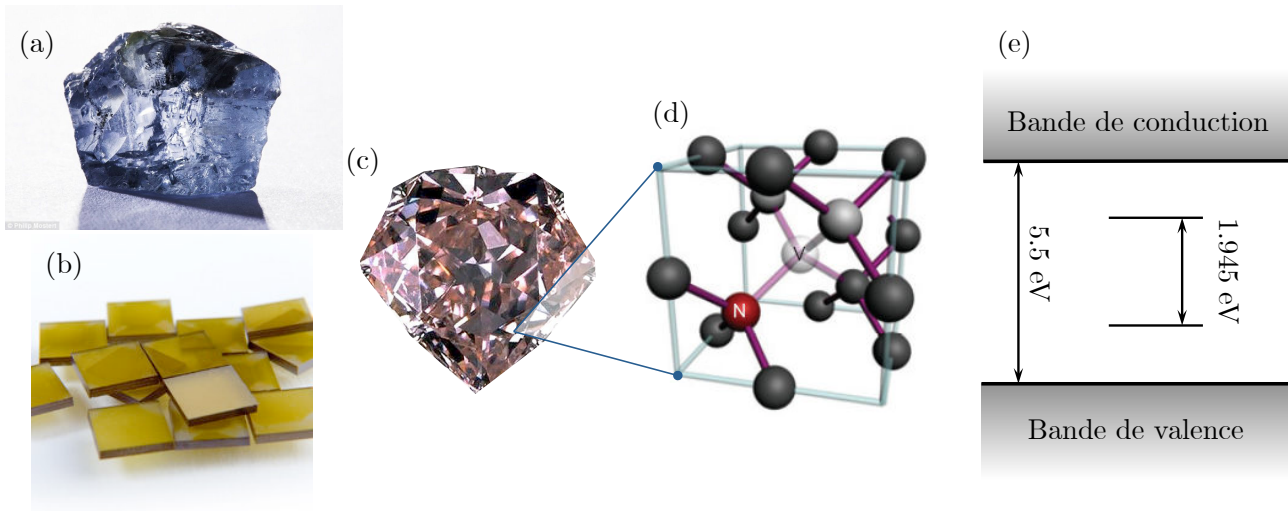


FIGURE 2.1 : **Centres colorés du diamant.** (a) Diamant brut découvert en 2014 dans la mine de Cullinan en Afrique du Sud, rendu bleu du fait d'un fort dopage par des atomes de bore. (b) Diamants synthétiques, qui doivent leur couleur jaune à la présence de nombreuses impuretés d'azote (*source : site de la compagnie Element 6*). (c) Diamant rose, dit « Hortensia », conservé au musée du Louvre. La teinte rose est causée par la présence de nombreux centres NV (d) Détail de la structure du centre NV dans la maille de diamant. Un atome de carbone est remplacé par un atome d'azote (N), tandis qu'un des atomes de carbone voisins est manquant (V). (e) Schéma de la structure de bandes du diamant, représentant le gap de 5.5 eV, ainsi que deux niveaux discrets à l'intérieur du gap. Ces niveaux correspondent ici à l'état fondamental et excité d'un centre  $NV^-$ , entre lesquels il est possible d'induire des transitions optiques.

L'une des propriétés remarquable des centres NV est leur parfaite photostabilité lorsqu'il sont excités optiquement, et ce même à température ambiante. Ceci marque une différence majeure entre le centre NV et la grande majorité des autres émetteurs individuels de lumière, que constituent les molécules uniques ou les boîtes quantiques. Dans la plupart de ces systèmes, le clignotement (disparition transitoire de la photoluminescence) et le blanchiment (disparition définitive de la photoluminescence) sont en effet une source de préoccupations majeures (voir par exemple [113–117]).

Le groupe de J. Wrachtrup en Allemagne a observé pour la première fois des centres NV à l'échelle individuelle en 1997 [118]. Cette observation a ouvert la voie à de multiples utilisations du centre NV, à commencer par des applications pour la cryptographie quantique [119] ou des tests fondamentaux de physique quantique [120]. Le centre NV constitue en effet une excellente source de photons uniques, intense, à l'état solide et à température ambiante. En parallèle, du fait de ses propriétés optiques, mais aussi en raison de la très faible toxicité du diamant, le centre NV a aussi suscité un grand intérêt comme marqueur fluorescent pour la biologie [121, 122].

<sup>2</sup> La très grande largeur de la raie Stokes provient d'une différence marquée entre les configurations électroniques des états fondamental et excité, ce qui déforme le cristal en cas d'excitation ou de désexcitation du défaut. C'est notamment pourquoi les largeurs des spectres d'émission et d'absorption demeurent quasi identiques à température ambiante ou cryogénique.

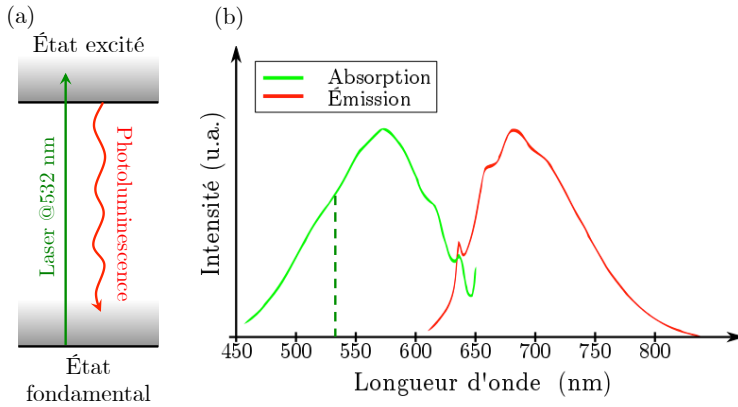


FIGURE 2.2 : **Propriétés optiques des centres NV.** (a) Schéma simplifié de la structure de niveau du centre NV, décrivant les transitions optiques mises en jeu pour obtenir les spectres de la figure (b). (b) En vert : intensité totale réémise par le centre NV en fonction de la longueur d'onde d'excitation. En rouge : intensité émise pour une excitation à 532 nm du centre NV. On remarquera que la raie *zéro-phonon* (ZPL), vers 637 nm, est très petite comparée à l'importance du déplacement Stokes dans les spectres.

Au-delà de ses propriétés optiques, le centre NV présente également des propriétés uniques associées à son état de spin électronique. En 2004, F. Jelezko *et al.* ont ainsi démontré la possibilité de manipuler de manière cohérente le spin électronique du centre NV, à température ambiante [123]. Ceci a permis par la suite la réalisation de très nombreuses expériences, tant pour l'étude de la physique des spins dans les solides que pour l'information quantique [124–127]. D'autre part, ce sont ces propriétés de spin qui vont nous permettre d'utiliser le centre NV comme magnétomètre. Nous allons en conséquence les détailler dans la partie qui suit.

### 2.1.2 Résonance magnétique détectée optiquement

Comme mentionné plus tôt, le centre NV possède deux électrons non appariés parmi les six qui ne participent pas à une liaison covalente avec un atome de carbone voisin. Dans l'état fondamental et l'état excité, ces deux électrons forment un état triplet de spin  $S = 1$ , comme décrit dans le schéma de niveaux de la figure 2.3(a). Les sous-niveaux de ces triplets sont décrits par le nombre quantique  $m_s$ , correspondant à la projection du spin sur l'axe de quantification du centre NV. Cet axe  $\mathbf{u}_{NV}$ , qui est fixé par la symétrie  $C_{3v}$  du défaut, relie virtuellement l'atome d'azote à la lacune, comme schématisé en figure 2.3(a). La dégénérescence entre les niveaux  $m_s = \pm 1$  et 0 (qui seront désormais dénotés  $|\pm 1\rangle$  et  $|0\rangle$ ) est levée dans l'état fondamental par interaction spin-spin à hauteur de  $D \simeq 2,87$  GHz. Comme indiqué en figure 2.3(a), les cycles optiques d'absorption et de réémission conservent la projection de l'état de spin, *i.e.* obéissent aux règles de sélection  $\Delta m_s = 0$ <sup>3</sup>.

Il existe cependant une voie de relaxation non-radiative qui ne conserve pas l'état de spin, car elle couple l'état excité à un état singulet. Cette désexcitation passe par un état que nous qualifierons de métastable du fait de son temps de vie très long ( $\sim 200$  ns) devant celui de l'état excité ( $\sim 10$  ns). Bien que la transition vers l'état métastable demeure encore non complètement comprise et fasse intervenir au moins deux états singulets, nous la modéliserons ici par un seul état, ce qui permettra, sans perdre en exactitude, d'expliquer simplement les processus permettant la mesure de champ magnétique avec le centre NV. Comme indiqué en figure 2.3(a), la propriété clé du centre NV est que le taux de transition vers le niveau métastable est beaucoup plus important pour les états  $|\pm 1\rangle$  que pour l'état  $|0\rangle$  [128].

3. C'est d'ailleurs pourquoi on se permettra de ne pas distinguer les états fondamental et excité dans la dénomination  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$ .

Ce déséquilibre a deux conséquences fondamentales. La première est qu'après un certain nombre de cycles optiques, le centre NV est **polarisé dans l'état  $|0\rangle$** . En effet si le centre NV est dans l'état de spin  $|0\rangle$ , il y demeure en ne subissant que des transitions radiatives qui conservent le spin entre les états fondamental et excité. En revanche, si le centre NV est originellement les états  $|\pm 1\rangle$ , en arrivant dans l'état excité, il aura une probabilité non négligeable de se coupler au métastable et de terminer dans l'état  $|0\rangle$ . Les niveaux  $|\pm 1\rangle$  vont donc progressivement se dépeupler sous excitation optique.

De plus, comme la transition par le métastable est non radiative, un centre NV dans les états  $|\pm 1\rangle$  émettra en moyenne moins de photons (environ 30% de moins) que lorsqu'il est dans l'état  $|0\rangle$ . Il est donc possible de **lire directement l'état d'un centre NV en observant son signal de photoluminescence**, lequel dépend de l'état de spin. On peut en effet considérer de façon schématique que l'état  $|0\rangle$  est un état « **brillant** » tandis que les états  $|\pm 1\rangle$  sont des états « **sombres** », comme symbolisé en figure 2.3(b).

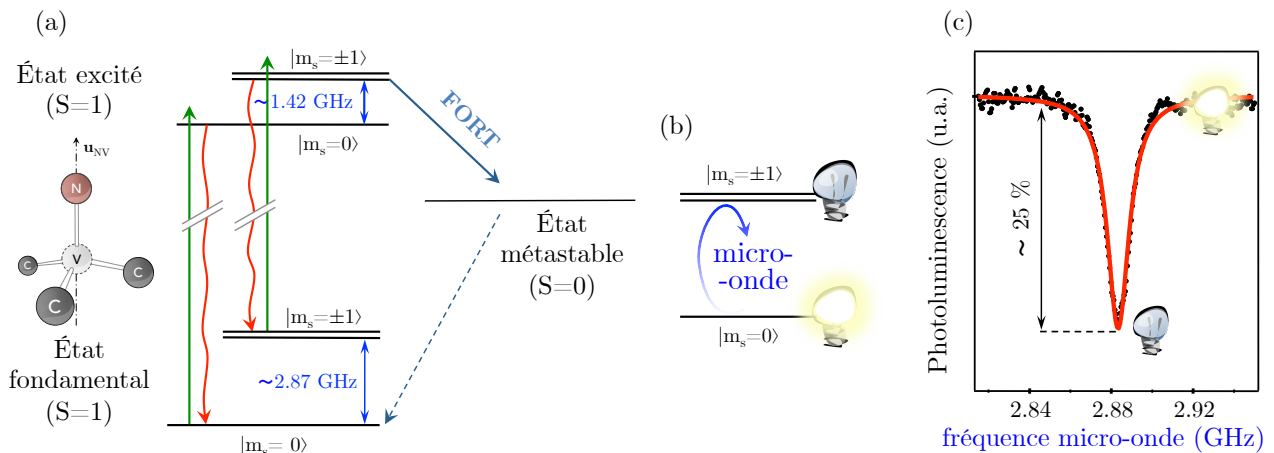


FIGURE 2.3 : **Principe de l'expérience de résonance magnétique détectée optiquement.** (a) Modélisation du centre NV du permettant de décrire ses principales propriétés utiles pour la magnéto-métrie. Les états fondamentaux et excités sont états des triplets de spin. Les transitions optiques entre état fondamental et excité (flèches vertes pour l'excitation à 532 nm et rouges pour la photoluminescence) conservent la projection  $m_s$  du spin sur l'axe  $\mathbf{u}_{NV}$ . En plus des transitions optiques, il existe une voie de désexcitation non radiative ne conservant pas l'état de spin, et modélisée ici par l'état métastable. Le taux de transition de  $|\pm 1\rangle$  vers le métastable est grand devant le taux de transition de  $|0\rangle$  vers le métastable. (b) Schéma de principe d'une expérience de résonance magnétique détectée optiquement (ODMR). Sous illumination verte, le centre NV est pompé dans l'état  $|0\rangle$  et émet beaucoup de lumière (état *brillant*). En appliquant une micro-onde résonante sur la transition entre  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$ , on bascule le spin dans l'état  $|\pm 1\rangle$  (état *sombre*), ce qui conduit à une chute de luminescence. (c) Spectre d'ODMR. Photoluminescence collectée provenant d'un centre NV unique, en fonction de la fréquence de la micro-onde appliquée. La chute de photoluminescence, que l'on peut ajuster numériquement (en rouge), permet de localiser la résonance.

Le centre NV présente donc trois propriétés clés lorsqu'il est excité dans le vert par un laser à 532 nm :

1. une photoluminescence parfaitement stable et intense dans le rouge ;
2. une polarisation (préparation) dans l'état de spin  $|0\rangle$  ;
3. une photoluminescence dépendant de l'état de spin ( $|0\rangle$  ou  $|\pm 1\rangle$ ), permettant une lecture directe de cet état.

Ces propriétés permettent de réaliser simplement, sur un spin individuel, une expérience de spectroscopie par résonance magnétique détectée optiquement (ODMR). Pour ce faire, le centre NV est éclairé par un laser à 532 nm. Il est donc préparé dans l'état « brillant »  $|0\rangle$  et émet beaucoup de photons. On vient alors appliquer un champ magnétique micro-onde autour de la fréquence de la transition entre les états  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$ . Lorsque la fréquence de la micro-onde atteint la résonance, vers 2.87 GHz, le centre NV bascule dans l'état  $|\pm 1\rangle$  via une transition dipolaire magnétique, conduisant à une chute du niveau de photoluminescence. Dès que la fréquence de la micro-onde s'éloigne de la transition, le laser pompe de nouveau le centre NV dans l'état  $|0\rangle$  et la photoluminescence réaugmente. On obtient ainsi des spectres tels que celui présenté en figure 2.3(c), avec un contraste typique d'une vingtaine de pourcents et une largeur de raie de quelques MHz en continu<sup>4</sup>. C'est en exploitant cette possibilité de repérer précisément la fréquence de la transition entre les niveaux  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$  que nous allons pouvoir utiliser le NV comme magnétomètre ultra-résolu. Nous allons pour cela commencer par décrire l'effet d'un champ magnétique sur le centre NV.

### 2.1.3 Application à la magnétométrie DC

En présence d'un champ magnétique, la dégénérescence entre les états  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  est levée par effet Zeeman. Ceci se traduit par un dédoublement de la raie de résonance magnétique du centre NV, comme dans l'exemple décrit en figure 2.4(c). En négligeant l'interaction avec les spins nucléaires voisins, la position des deux raies de résonance en présence d'un champ  $\mathbf{B}$  est donnée par le Hamiltonien du spin dans l'état fondamental [14]

$$\mathcal{H} = hDS_Z^2 + hE(S_X^2 - S_Y^2) + g\mu_B\mathbf{B} \cdot \mathbf{S}, \quad (2.1)$$

où  $\mathbf{S}$  est l'opérateur de spin adimensionné,  $h$  est la constante de Planck et  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr. La base  $(X, Y, Z)$  est rattachée au centre NV, la direction  $Z$  étant celle de l'axe  $\mathbf{u}_{NV}$ . La constante  $g = 2,0030(3)$  est le facteur de Landé [130],  $D \approx 2,87$  GHz correspond au paramètre de séparation en champ nul entre les états  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$  et  $E$  est un paramètre décrivant l'action d'une contrainte mécanique transverse sur le centre NV<sup>5</sup>. Le paramètre  $E$  dépend beaucoup du matériau et peut varier de quelques centaines de kHz, pour des centre NV dans des diamants massifs, jusqu'à quelques MHz, pour des centres NV contenus dans des nano-diamants.

---

4. Contraste et largeur de raie ODMR dépendent fortement du bruit magnétique et donc de la pureté du diamant, mais également des intensités du laser et de la micro-onde utilisés. Dans cette thèse, toutes les expériences présentées seront réalisées sous excitation continue et nous n'aborderons pas la discussion sur les largeurs de raie et leur contraste. Plus de détails pourront être trouvés dans la référence [129].

5.  $E$  dépend également du champ électrique transverse. Cette variation, de  $17 \pm 3$  Hz·cm/V [131], restera en général suffisamment faible pour que l'on n'ait pas à se soucier de cette influence dans nos expériences. Il est toutefois possible d'utiliser cette dépendance en champ électrique pour utiliser le centre NV un capteur de champ électrique, de la même façon que nous l'utilisons comme magnétomètre [132].

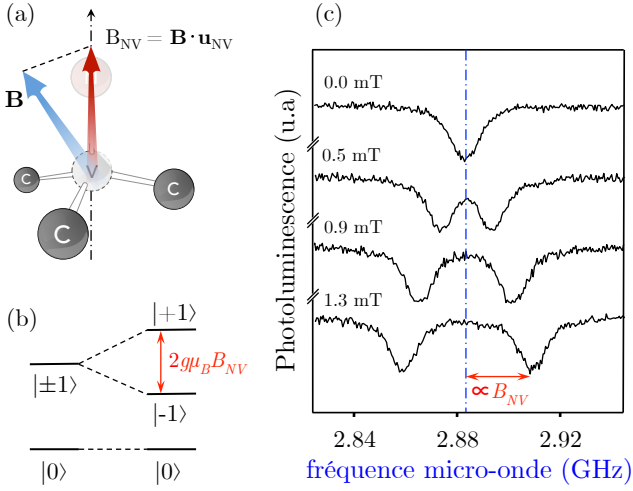


FIGURE 2.4 : Utilisation du NV comme magnétomètre de taille atomique. (a) Structure schématique du centre NV. L'axe de quantification est matérialisé par  $\mathbf{u}_{NV}$ . La flèche bleue représente le champ magnétique  $\mathbf{B}$ , tandis que la flèche rouge correspond à la projection  $B_{NV} = \mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{NV}$  du champ sur l'axe du défaut. (b) La présence d'un champ magnétique externe conduit par effet Zeeman à séparer les niveaux  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$ . (c) Spectres ODMR pour un centre NV unique pour différentes valeurs du champ magnétique  $B_{NV}$ . On peut directement et quantitativement observer le clivage Zeeman entre  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$  sur la position des raies de résonance magnétique.

La diagonalisation de la matrice associée à  $\mathcal{H}$  dans la base  $(X, Y, Z)$  permet de déterminer trois énergies propres. Ces énergies propres sont associées aux trois états propres du spin du centre NV plongé dans un champ magnétique, que l'on peut considérer être les états  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$  pour plus de clarté. Si l'on appelle  $e_0$ ,  $e_1$  et  $e_{-1}$  les énergies propres associées, les fréquences  $f_1$  et  $f_2$  des deux transitions ODMR sont donc directement données par la différence entre ces énergies, à savoir  $f_1 = (e_1 - e_0)/h$  et  $f_{-1} = (e_{-1} - e_0)/h$ . Dans notre expérience, cependant, les transitions de  $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$  et  $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$  sont excitées par une polarisation linéaire du champ micro-onde. Nous n'avons donc aucun moyen de discerner  $f_1$  et  $f_{-1}$ . On considère donc simplement les deux fréquences  $f_+ = \max(f_1, f_{-1})$  et  $f_- = \min(f_1, f_{-1})$ .

Le déplacement Zeeman, que nous définirons comme  $\Delta f_{NV} = f_{\pm} - D$ , est dans le cas général fonction à la fois de la composante parallèle du champ  $B_{NV} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{NV}|$  et de la composante orthogonale  $B_{NV,\perp} = \|\mathbf{B} \times \mathbf{u}_{NV}\|$ . Cependant, dans la limite des faibles champs orthogonaux  $g\mu_B B_{NV,\perp} \ll hD$ ,  $g\mu_B B_{NV}$  [133], la position des raies sera seulement déterminée par la projection du champ sur l'axe du centre NV par

$$\Delta f_{NV} \approx \sqrt{E^2 \pm \left(\frac{\gamma_{NV}}{2\pi} \cdot B_{NV}\right)^2} \quad (2.2)$$

où on a introduit  $\gamma_{NV} = g\mu_B/h = 2\pi \cdot 28,035(5)$  GHz/T, le rapport gyromagnétique du centre NV.

À partir de cette résolution, on peut distinguer trois régimes. Tout d'abord, lorsque  $B_{NV}$  est nul, la position des deux résonances est donnée par  $f_- = D - E$  et  $f_+ = D + E$ . L'acquisition d'un spectre ODMR en champ nul permet donc de mesurer précisément les paramètres  $D$  et  $E$  [cf. figure 2.5]. Ces deux paramètres peuvent en effet varier d'un centre NV à l'autre. La détermination précise de  $D$  et  $E$  en champ nul est donc un préalable à toute expérience de magnéto-métrie quantitative.

Dans le cas où  $B_{NV}$  est non-nul, il apparaît dans l'expression (2.2) que la contrainte est en compétition avec le champ magnétique pour déplacer la position des résonances. Si  $B_{NV} < 2\pi E/\gamma_{NV}$ , le déplacement Zeeman varie quadratiquement avec  $B_{NV}$ ,  $\Delta f_{NV} \approx E + (B_{NV})^2 (\gamma_{NV}^2/8\pi^2 E)$  et la sensibilité en champ magnétique est mauvaise.

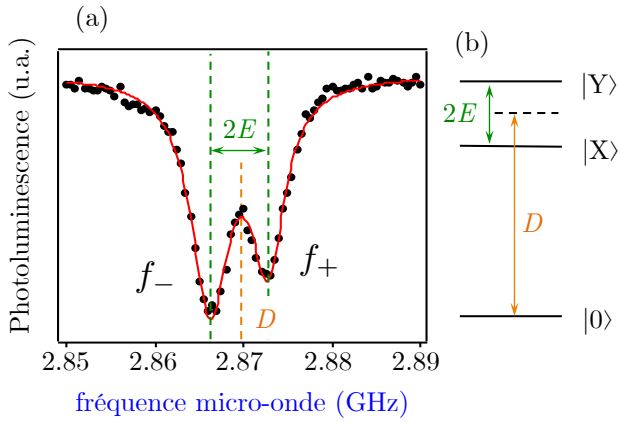


FIGURE 2.5 : Spectre ODMR en champ nul.

(a) Spectre ODMR en champ nul typique pour un centre NV unique dans un nano-diamant. C'est la contrainte (paramètre  $E$ ) qui éclate les deux raies du spectre, comme indiqué sur le schéma de niveaux (b). On peut simplement remonter aux paramètres  $E$  et  $D$  du Hamiltonien de l'équation (2.1) en ajustant le spectre d'ODMR en champ nul par une somme de deux gaussiennes, centrées en  $f_- = D - E$  et  $f_+ = D + E$ .

Afin de disposer d'un magnétomètre sensible, il est nécessaire de se placer dans un régime où le déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$  varie linéairement avec  $B_{NV}$ . Ceci se produit si  $B_{NV} \gg 2\pi E/\gamma_{NV}$ , soit  $B_{NV} \gg 0,1$  mT dans les nano-diamants que nous utiliserons dans cette thèse. Au-dessus de parois de domaines, le champ magnétique est en conséquence suffisamment fort pour se trouver dans le régime linéaire. D'autre part, il est toujours possible de se placer en régime linéaire en appliquant un champ magnétique externe dans l'axe du centre NV. Dans tous les cas, et afin d'éviter une erreur superflue, nous présenterons l'ensemble des données de ce manuscrit en termes de déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$ , puisque c'est la grandeur à laquelle nous avons accès.

Dans le régime où  $\Delta f_{NV}$  varie linéairement avec  $B_{NV}$  la sensibilité du magnétomètre devient liée à la largeur  $\Delta f_r$  des raies ODMR. La détection étant limitée au bruit de grenaille dû à la statistique Poissonienne d'arrivée des photons sur les détecteurs, nous pouvons écrire la sensibilité  $\eta$  correspondant au plus petit champ détectable  $\delta B$  pendant un temps  $\Delta t$  comme [129]

$$\eta = \delta B \sqrt{\Delta t} \approx \frac{1}{\gamma_{NV}} \frac{\Delta f_r}{C \sqrt{\mathcal{R}}}$$

où  $C$  désigne le contraste sans dimension de la raie de résonance, et  $\mathcal{R}$  correspond au taux de collection de photons [14]. Pour des valeurs typiques sous excitation continue du centre NV de  $\Delta f_r = 5$  MHz,  $C = 20\%$  et  $\mathcal{R} = 100$  coups/ms (ie.  $10^5$  photons collectés par seconde), on obtient un ordre de grandeur pour  $\eta$  de  $\sim 10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ . Cette sensibilité peut être considérablement augmentée dans certains cas en passant à des schémas d'excitation micro-onde impulsionnelle pour diminuer la largeur des raies [14, 129]. Dans nos expériences, nous utilisons toutefois dans la grande majorité des cas des nano-diamants, où l'environnement de bruit magnétique intrinsèque du centre NV dégrade naturellement la largeur de raie, ce qui rend impossible un gain en sensibilité au delà des  $10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  que nous venons d'introduire.

Dans la pratique, nous déterminons la position des raies de résonance en diagonalisant numériquement la matrice associée au Hamiltonien  $\mathcal{H}$  de l'équation (2.1), plutôt que d'effectuer une résolution analytique de celui-ci. On obtient de la sorte très rapidement et de manière quasi exacte la position de ces raies. Toutefois, la formule de l'équation (2.2), qui reste valide dans la plupart des expériences, permet généralement de se faire une bonne idée de la valeur du champ magnétique.

Un des autres aspects qui transparaît dans l'équation (2.2) est que l'on n'a accès qu'à la **valeur absolue du champ magnétique**  $|B_{NV}|$ . En effet on ne s'intéresse dans notre cas qu'à l'écart  $\Delta f_{\pm}$  entre les raies, et pas à proprement parler à la position des états  $|+1\rangle$  et  $|-1\rangle$ . Cela provient du fait que nous ne puissions pas, dans notre expérience, faire la distinction entre les deux transitions  $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$  et  $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ . On ne peut donc pas connaître le sens du champ magnétique. Dans un cas où la connaissance de cette information serait nécessaire, une solution simple consiste à appliquer un champ externe de direction connue, qui s'additionnera ou se soustraira au champ à mesurer [134].

Afin de résumer les propriétés que nous avons développées dans cette partie, on peut dire que **le centre NV est intrinsèquement un magnétomètre de taille atomique, quantitatif et sensible à  $10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$** .

## 2.2 Microscope à balayage de centre NV

Une des solutions pour transformer le magnétomètre de taille atomique qu'est le centre NV en système d'imagerie est de suivre l'idée initiale introduite en 2005 par Chernobrod et collègues [135, 136], idée qui consiste à attacher un spin unique au bout d'une pointe de microscope à force atomique (AFM). Ce principe a été réalisé expérimentalement avec le centre NV pour la première fois en 2008 par Balasubramanian et collaborateurs [137]. On dispose ainsi d'une sonde que l'on peut déplacer librement au-dessus d'un échantillon, ce qui permet point après point de lire la valeur du champ magnétique, et finalement de reconstruire des images.

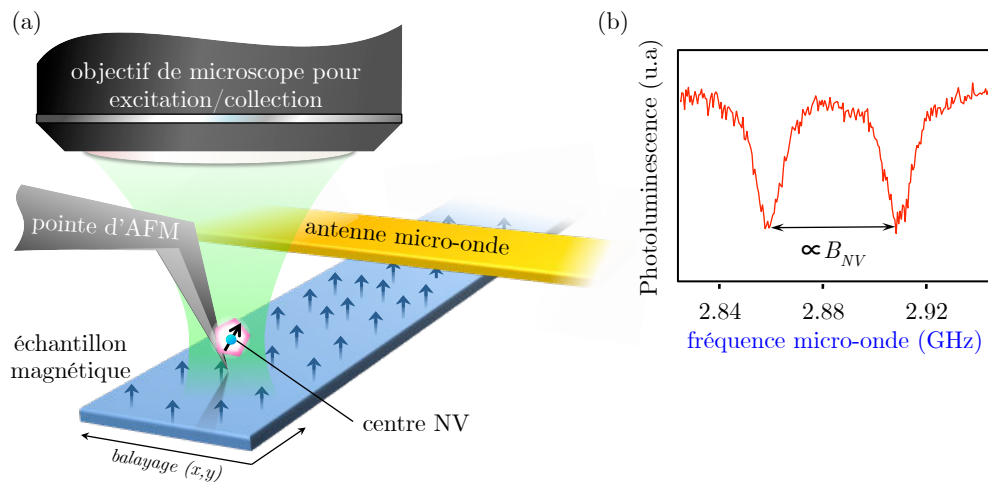


FIGURE 2.6 : **Microscope à balayage de centre NV.** (a) Schéma de l'instrument. Un centre NV unique dans un nano-cristal de diamant accroché au bout d'un pointe de microscope à force atomique (AFM) est excité optiquement par un laser à 532 nm. En le manipulant avec des micro-ondes et en collectant sa fluorescence par le même objectif, on peut mesurer un spectre de résonance magnétique du spin du centre NV. (b) Exemple de spectre de résonance magnétique permettant de mesurer le champ magnétique. Pour construire une image, on acquiert un spectre en chaque point de l'échantillon.



Un tel microscope à balayage de centre NV a été développé dans notre laboratoire par L. Rondin et J.-P. Tétienne [138]. Son principe est représenté en figure 2.6. Un centre NV unique dans un nano-cristal de diamant est accroché au bout d'un pointe d'AFM. Sa manipulation, par optique et par des micro-ondes, permet de mesurer le déplacement Zeeman du spin du centre NV et donc le champ magnétique. On peut ainsi, en déplaçant l'échantillon sous la pointe, reconstruire des cartographies du champ magnétique au-dessus de l'échantillon.

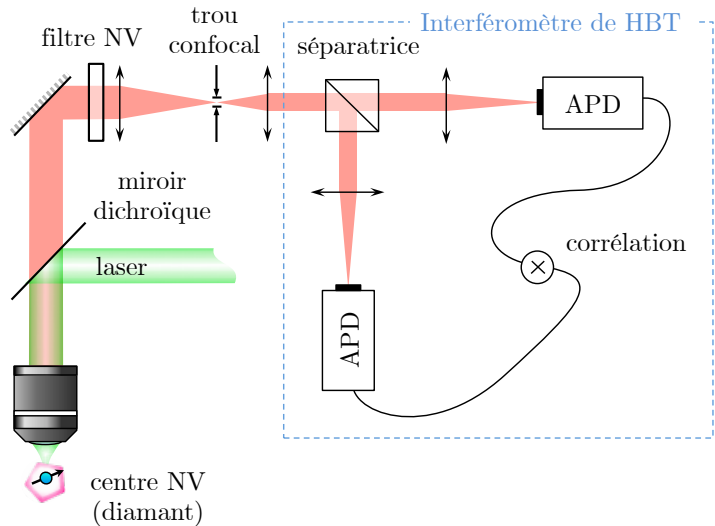
Nous allons succinctement décrire l'instrument, sur lequel beaucoup plus de détails pourront être trouvés dans les manuscrits de thèse de Loïc Rondin et de Jean-Philippe Tétienne [112, 139]. Nous commencerons par décrire le dispositif expérimental (§2.2.1) qui consiste en une partie optique, couplée à un AFM. Ensuite, nous nous intéresserons plus particulièrement à la fonctionnalisation du microscope, c'est-à-dire, à l'accrochage d'un nano-diamant contenant un centre NV au bout de la pointe d'AFM (§2.2.2). Enfin, nous décrivons la caractérisation de la sonde fonctionnalisée (§2.2.3) et terminerons cette présentation de l'instrument par une discussion sur sa résolution spatiale (§2.2.4).

### 2.2.1 Dispositif expérimental

**Montage optique** La première partie du dispositif est constituée par l'optique de détection du centre NV. Afin d'enregistrer des spectres de résonance magnétique, et ainsi de remonter à la valeur du champ magnétique, il faut exciter le centre NV par laser, et collecter sa photoluminescence.

Le montage est un microscope optique confocal placé au-dessus d'un AFM fonctionnalisé avec un centre NV. Il est schématisé en figure 2.7(a). Le centre NV est excité par un laser vert de longueur d'onde 532 nm via un objectif de microscope (Olympus MPLFLN  $\times 100$ ) d'ouverture numérique 0,9 et présentant une grande distance de travail (1 mm), de sorte que l'on dispose d'un espace suffisant pour loger la pointe d'AFM entre l'objectif et l'échantillon.

FIGURE 2.7 : **Montage optique.** (a) Schéma du montage utilisé pour l'excitation du centre NV et la collection de sa photoluminescence. Un laser de longueur d'onde 532 nm polarisé linéairement et contrôlé en puissance est focalisé au niveau du centre NV par un objectif ouvert à 0,9. La photoluminescence rouge émise par le centre NV est collectée par le même objectif, séparée par un miroir dichroïque et épurée dans un trou confocal de  $50 \mu\text{m}$ . Les photons collectés sont également filtrés spectralement puis envoyés sur une séparatrice et focalisés sur deux photodiodes à avalanche (APD) utilisées comme compteurs de photons. Ce montage constitue un interféromètre de Hanbury-Brown et Twiss, et nous permet de caractériser le centre NV après accrochage [cf. §2.2.3].



La photoluminescence rouge du centre NV est collectée par le même objectif de microscope, puis séparée de l'excitation par un miroir dichroïque. Afin de conserver uniquement la photoluminescence en provenance du centre NV, la lumière collectée est ensuite filtrée dans un système confocal avec un trou de  $50\ \mu\text{m}$  de diamètre. Après ce filtrage spatial, on effectue un second filtrage spectral sur une bande de  $200\ \text{nm}$ , correspondant à la gamme d'émission du centre NV. Enfin, les photons émis par le centre NV sont focalisés sur deux photodiodes à avalanche (APD), utilisées comme compteurs de photons. Cette configuration de détecteurs permet de réaliser des mesures de corrélation temporelle du signal collecté pour s'assurer qu'un seul centre NV est présent au bout de la pointe d'AFM [cf. §2.2.3].

**Microscope à force atomique** La seconde partie de l'instrument est l'AFM, schématisé en figure 2.8(a). Celui que nous utilisons pour notre expérience est un prototype développé par la compagnie Attocube Systems (Munich, Allemagne). Il consiste en deux tours indépendantes, l'une pour la pointe et l'autre pour l'échantillon, chacune composée d'un positionneur 3-axes micrométrique de course  $3 \times 3 \times 2,5\ \text{mm}$ , et d'un scanner 3-axes piézoélectrique, permettant de balayer une aire de  $30 \times 30\ \mu\text{m}^2$  avec une extension verticale de  $4,3\ \mu\text{m}$ . Dans nos expériences, la pointe est maintenue fixe tandis que l'échantillon est déplacé sous celle-ci pour réaliser des images.

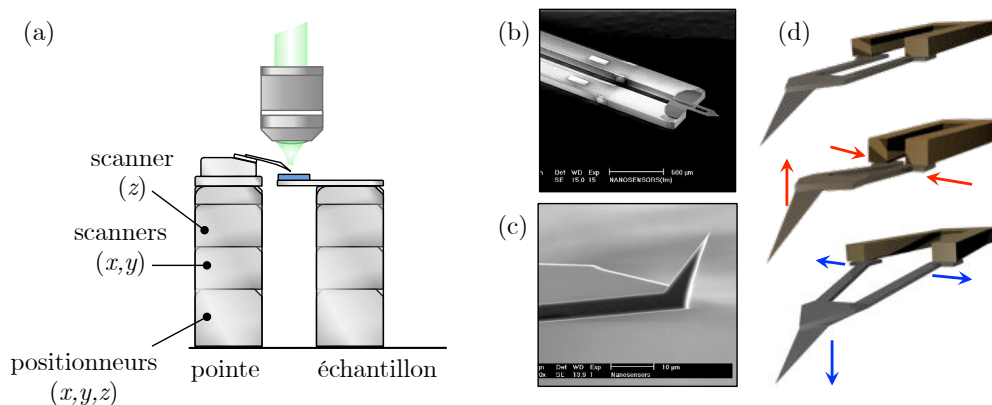


FIGURE 2.8 : **Microscope à force atomique (AFM)**. (a) Schéma de la configuration de l'AFM. La pointe et l'échantillon sont montés sur deux tours distinctes. Celles-ci sont constituées par des positionneurs micrométriques pour le déplacement grossier dans les trois directions, positionneurs sur lesquels sont montés des scanners piézoélectriques 3 axes, permettant de balayer une aire de  $30 \times 30\ \mu\text{m}^2$  avec une résolution nanométrique. Les pointes utilisées sont des pointes de type Akiyama en silicium, qui permettent de travailler en mode *tapping* tout en bénéficiant d'une détection entièrement électronique du signal d'AFM, via un diapason. (b) et (c) Images en microscopie électronique de la pointe Akiyama (*source : site du fournisseur NANOSENSOR*) (d) Schéma de principe d'une pointe Akiyama. L'oscillation horizontale du diapason est transformée, grâce à une pointe flexible, en oscillation verticale. (*images adaptées de la thèse de L. Rondin [112]*)

L'élément central d'un AFM est la pointe utilisée pour mesurer la topographie. Dans notre expérience, les pointes sont de type *Akiyama* [140], en silicium dopé, produites par la compagnie NANOSENSOR (Suisse). Ces pointes sont décrites en figure 2.8(b), (c) et (d). Elles consistent en un diapason de quartz, aux deux extrémités duquel est soudée une feuille de silicium flexible, terminée par la pointe [figure 2.8(b)]. Le diapason est excité par un transducteur piézoélectrique, de sorte que les deux bras oscillent en opposition de phase. L'oscillation horizontale du diapason est convertie par la feuille de silicium en mouvement vertical de la pointe [figure 2.8(d)]. L'avantage d'utiliser des pointes Akiyama réside dans le fait que le signal d'oscillation de la pointe d'AFM est détecté électriquement, via le diapason en quartz, tout en permettant une opération en mode de contact intermittent (*tapping* en anglais). On s'affranchit ainsi d'une détection optique qui pourrait parasiter les mesures de photoluminescence du centre NV, en conservant la précision du *tapping*. Les pointes que nous utilisons sont également obliques pour ne pas masquer l'excitation optique, et ont un rayon de courbure à l'extrémité de l'ordre de 80 nm [figure 2.8(c)].

Dans nos expériences, la rétroaction permettant de suivre la topographie d'une surface est effectuée sur l'amplitude du signal d'oscillation du diapason. Nous avons mesuré dans une étude précédente l'amplitude typique d'oscillation (verticale) des pointes comme étant de l'ordre de quelques nanomètres [141], ce qui en général ne sera pas un facteur limitant pour la magnétométrie. On pourra donc considérer que la distance entre la pointe et l'échantillon est une constante.

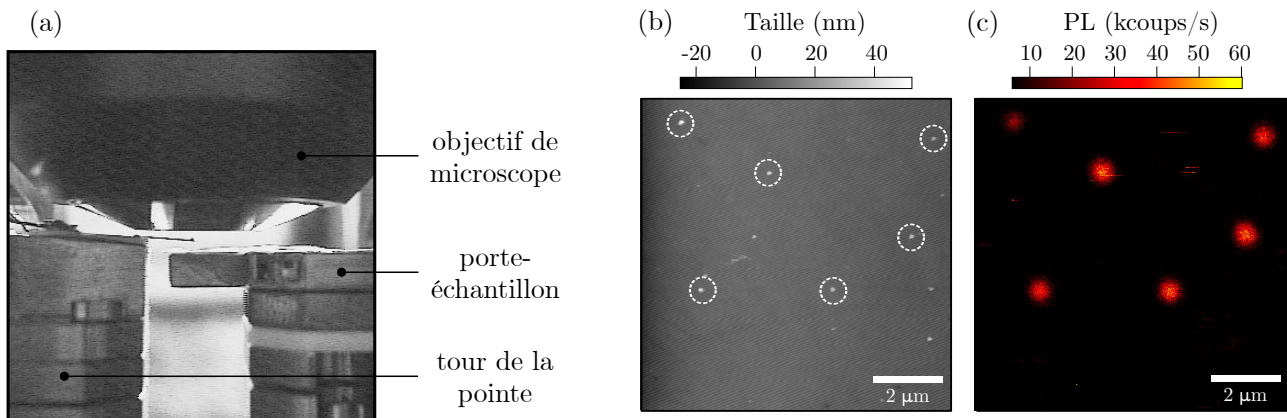


FIGURE 2.9 : **AFM couplé à un microscope optique.** (a) Photographie du dispositif expérimental (au niveau de l'AFM, vue de côté). L'instrument combine une AFM et un microscope optique. Il est donc possible de mesurer simultanément la topographie d'un échantillon et sa fluorescence. (b) Image typique de la topographie, mesurée par AFM, d'une lame de quartz sur laquelle on a déposé des nano-cristaux de diamant contenant des centres NV. (c) Image optique du même échantillon, acquise simultanément à (b). L'optique étant alignée avec la mesure d'AFM, on peut colocaliser les deux images. Les centres NV, en rouge sur l'image (c) correspondent aux cercles blancs sur l'image (b). *Image adaptée du travail de thèse de L. Rondin* [112].

Nous disposons finalement d'un système AFM, combiné à un microscope de fluorescence. On peut ainsi réaliser des acquisitions simultanées de luminescence et de topographie d'un échantillon, tel que présenté en figure 2.9(b) et (c). Ces acquisitions simultanées, sur un échantillon de nano-diamants fluorescents déposés sur une lame de quartz, permettent de vérifier l'alignement entre optique et AFM, par colocalisation. On peut notamment repérer les nano-diamants contenant des centres NV, entourés par des cercles blancs sur l'image AFM.

Afin de transformer cet instrument en un microscope à balayage de NV, il est nécessaire de fonctionnaliser la pointe de l'AFM avec un centre NV. Cette étape cruciale de l'expérience est décrite dans le paragraphe qui suit.

### 2.2.2 Fonctionnalisation du microscope

La procédure de fonctionnalisation de la pointe par un nano-cristal de diamant contenant un unique centre NV est décrite en figure 2.10. L'obtention de nano-diamants contenant en moyenne un centre NV est le fruit de plusieurs années de développements qui sont détaillés dans le manuscrit de thèse de Loïc Rondin [112]. Des poudres commerciales de diamant, fortement dopées en azote sont irradiées avec des électrons pour créer des lacunes. Un recuit à 800°C permet d'optimiser la conversion des impuretés d'azote en centres NV. La poudre est ensuite nettoyée à l'acide et oxydée à l'air pour éliminer le graphite de la surface des cristaux, et ainsi permettre au centre NV de se trouver dans l'état de charge  $NV^-$  [142]. On obtient de la sorte des nano-diamants contenant en moyenne un centre NV, relativement monodispersés. Pour les expériences présentées dans ce manuscrit, nous avons utilisé des nano-cristaux d'une cinquantaine de nanomètres.

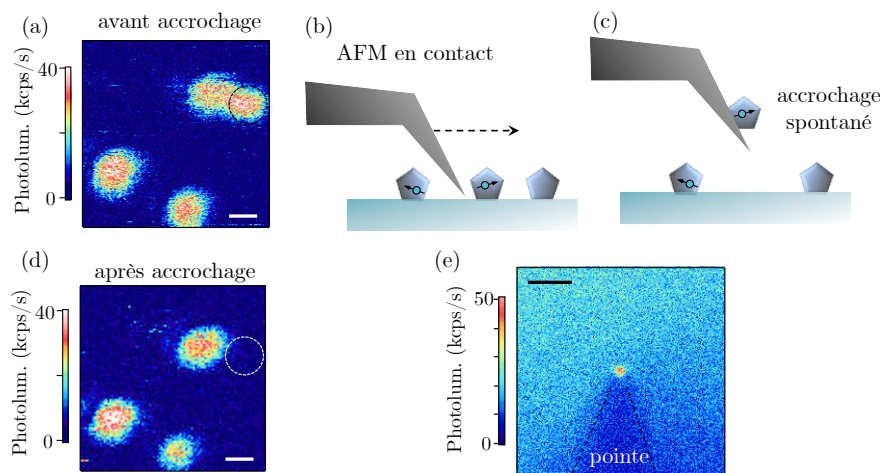


FIGURE 2.10 : **Procédure d'accrochage.** (a) Image optique de photoluminescence de nano-diamants sur une lame de quartz. Le cercle noir indique le centre NV à accrocher (*barre d'échelle* : 500 nm). (b) et (c) Schémas décrivant la procédure d'accrochage. La pointe d'AFM est au-dessus du diamant à accrocher. Elle est balayée en contact de l'échantillon jusqu'à ce que le nano-diamant s'accroche spontanément. (d) Même image qu'en (a) après accrochage. Le centre NV choisi a bien disparu (cercle blanc). (e) Image de photoluminescence centrée sur l'extrémité de la pointe d'AFM. La tache brillante au bout de la pointe correspond au centre NV (*barre d'échelle* : 2  $\mu\text{m}$ ).

Lorsque l'on souhaite fonctionnaliser une pointe avec un centre NV, nous commençons par disperser les particules de diamant en solution sur une lame de quartz, à la tournette. L'échantillon est ensuite placé dans notre microscope. Une image optique de fluorescence [figure 2.10(a)] permet de trouver un centre NV disposant de propriétés satisfaisantes (en particulier en termes de taux d'émission). Une fois un centre NV choisi, la pointe d'AFM est alignée dans le volume focal de l'objectif de microscope, au-dessus du diamant à accrocher. Elle est ensuite balayée en contact de l'échantillon, et le nano-diamant finit par s'accrocher spontanément. Pour faciliter l'accrochage, on peut tremper au préalable la pointe dans un polymère cationique (poly-L-lysine), ce qui permet de tirer parti du fait que la surface des nano-diamants est chargée négativement [143, 144]. L'utilisation de la poly-L-lysine apporte une grande amélioration pour accrocher de petits diamants ( $\varnothing \sim 5 - 10$  nm), tandis que pour les diamants plus gros ( $\varnothing \sim 50$  nm) avec lesquels l'accrochage est plus efficace, l'apport du polymère semble moins significatif.

Une fois que le diamant est accroché, on peut rétracter la pointe fonctionnalisée et vérifier par une seconde image optique de l'échantillon que le centre choisi a bien disparu [figure 2.10(d)]. Enfin, une image de fluorescence de la pointe d'AFM permet de s'assurer de la présence du diamant, qui apparaît comme un point brillant à son extrémité [figure 2.10(e)]. La pointe étant fonctionnalisée, il ne reste plus qu'à caractériser le centre NV accroché.

### 2.2.3 Caractérisation de la sonde de champ magnétique

Une fois le diamant attaché à la pointe, il convient de s'assurer de ses bonnes propriétés pour la magnéto-métrie. La première étape consiste à vérifier que l'on a bien accroché un centre NV unique. Ceci est réalisé via une expérience de corrélation de photon à l'aide d'un montage de Hanbury, Brown et Twiss (HBT). Ensuite, on mesure les paramètres associés à la résonance magnétique du centre NV à savoir  $D$  et  $E$  par l'acquisition d'un spectre d'ODMR en champ nul. Enfin, nous mesurons l'orientation du centre NV dans le référentiel du laboratoire.

**Unicité du centre NV** Afin de vérifier que l'on a bien accroché un centre unique, on réalise une expérience de Hanbury-Brown et Twiss (voir par exemple la référence [145]). Le principe est de mesurer les corrélations d'intensité sur les deux détecteurs, dans le montage décrit en figure 2.11(a). Le centre NV est en effet un émetteur de photons uniques, c'est-à-dire qu'il ne peut émettre les photons qu'un par un. Si un centre NV unique est dans le volume focal, quand le photon émis par ce centre NV entre dans le montage de détection, il est redirigé par la séparatrice sur l'une ou l'autre des APD, mais il ne peut pas frapper les deux détecteurs à la fois. La corrélation  $g^{(2)}(\tau)$  de l'intensité mesurée par les deux APD doit donc être nulle, pour un délai  $\tau = 0$ . Si deux centres NV sont dans le volume focal, en revanche, ils peuvent émettre simultanément deux photons, qui iront se répartir sur les deux détecteurs. La corrélation au délai  $\tau = 0$  des intensités sur les deux APD sera donc non nulle, et vaudra  $g^{(2)}(0) = 1/2$ .

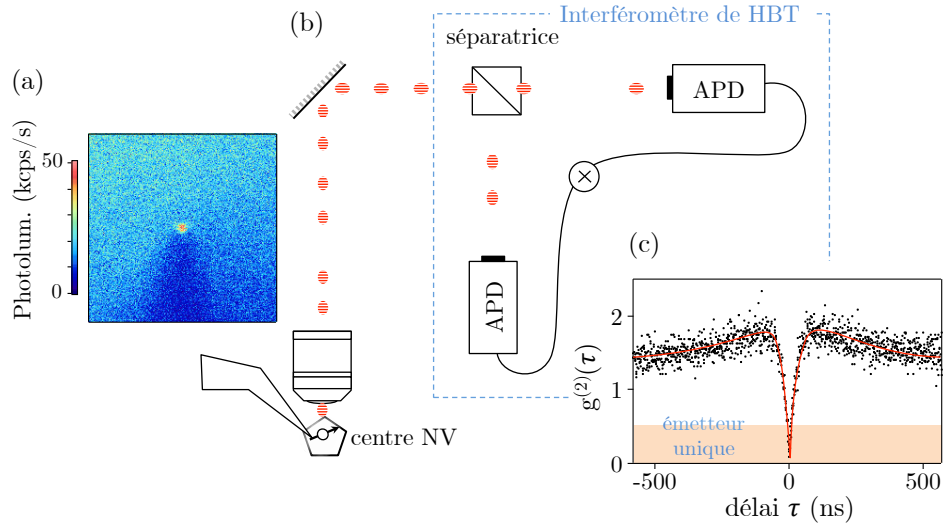


FIGURE 2.11 : **Expérience d’Hanbury, Brown et Twiss (HBT) avec des photons uniques.** (a) Image de la figure 2.10(e), de la photoluminescence au niveau de l’extrémité de la pointe après accrochage. (b) Schéma simplifié de la détection. Les photons uniques, schématisés en rouge, sont défléchis par la séparatrice sur l’une ou l’autre des APD. La corrélation du signal électrique des deux détecteurs permet de vérifier que l’on observe un émetteur de photons uniques. (c) Expérience typique de corrélations de photons, sur le signal en provenance de l’extrémité de la pointe. La valeur  $g^{(2)}(0) < 1/2$  assure que l’on a bien un centre NV individuel (la ligne rouge est un guide pour l’œil).

De ce fait on dispose d’un moyen simple pour s’assurer que l’on observe un centre NV unique. Il suffit de vérifier, comme en figure 2.11(b), que la corrélation normalisée  $g^{(2)}(\tau)$  entre les signaux électroniques provenant des deux APD disparaît au retard nul, ie.  $g^{(2)}(0) < 0,5$ .

**ODMR et mesure de l’orientation** Après s’être assuré que l’on a fonctionnalisé la pointe avec un centre NV unique, il convient de caractériser les quatre paramètres liés au spin électronique du NV, à savoir le paramètre de séparation en champ nul  $D$ , le paramètre de contrainte  $E$ , ainsi que le couple d’angles sphériques  $(\theta, \phi)$  qui détermine l’orientation du centre NV dans le repère  $(x, y, z)$  lié au laboratoire et défini par les axes de translation de l’AFM.

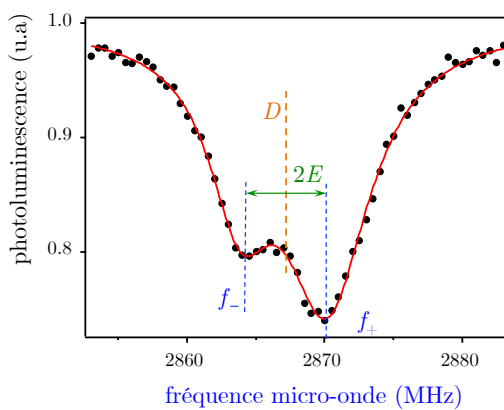


FIGURE 2.12 : **Mesure des paramètres  $D$  et  $E$ .** L’ajustement d’un spectre ODMR en champ nul par deux gaussiennes permet de repérer avec précision la position des fréquences  $f_+$  et  $f_-$ . Les paramètres  $D$  et  $E$  du spin électronique du centre NV s’en déduisent par  $D = (f_+ + f_-) / 2$  et  $E = (f_+ - f_-) / 2$ . La précision de cette mesure est généralement de l’ordre de 0,2 MHz.

Comme indiqué au §2.1.3, les paramètres  $D$  et  $E$  sont mesurés en enregistrant un spectre d'ODMR en champ nul. L'excitation de la transition entre les niveaux  $|0\rangle$  et  $|\pm 1\rangle$  est effectuée grâce à une antenne (généralement lithographiée, en or) directement à même de l'échantillon [cf. figure 2.6]. La polarisation linéaire du champ micro-onde ainsi obtenu permet d'exciter indifféremment les transitions  $\sigma_{\pm}$  de  $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$  et de  $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ , avec une efficacité qui dépend de l'orientation du centre NV par rapport à l'antenne.

Le spectre d'ODMR enregistré en champ nul est ajusté par deux gaussiennes centrées sur les fréquences  $f_-$  et  $f_+$  [figure 2.12].  $D = (f_+ + f_-)/2$  correspond à la fréquence centrale, tandis que  $2E = (f_+ - f_-)$  représente l'écart entre les deux raies. Ces deux grandeurs sont de la sorte mesurées avec une incertitude typique de 0,2 MHz dans nos expériences, liée à la précision de l'ajustement. Une fois  $D$  et  $E$  connus, il est possible de mesurer l'orientation du centre NV. La procédure suivie pour cette mesure est décrite en figure 2.13.

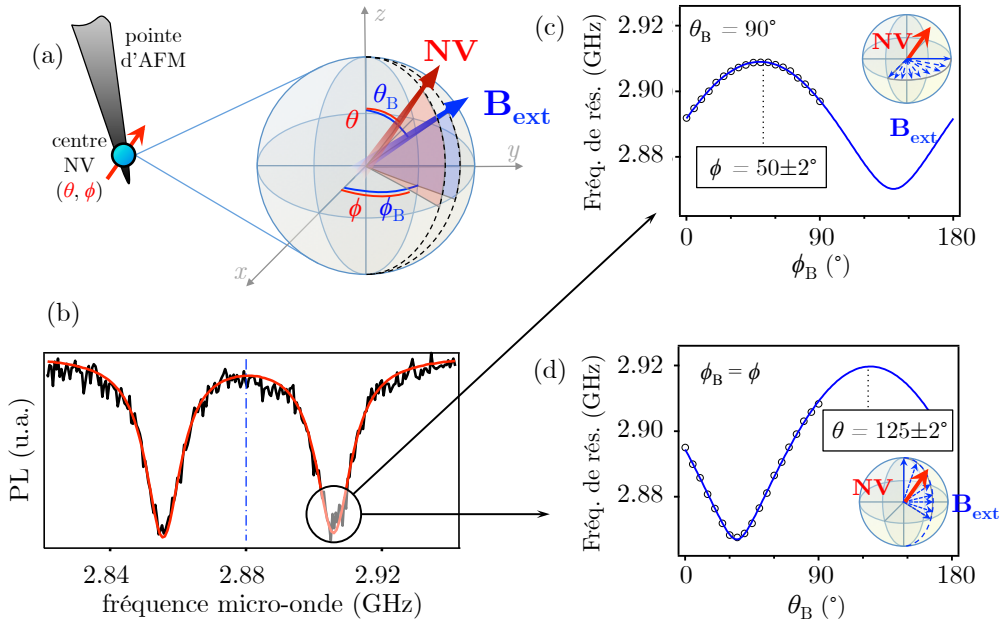


FIGURE 2.13 : Mesure d'orientation du centre NV. (a) Définition des notations. L'orientation du centre NV (attaché au bout de la pointe d'AFM) est donnée par les angles sphériques  $\theta$  (par rapport à la verticale  $z$ ) et  $\phi$  (par rapport à l'axe  $x$ ). On définira avec les mêmes conventions la direction du champ magnétique au niveau du centre NV par le couple  $(\theta_B, \phi_B)$ . (b) Spectre typique d'ODMR (c) Position de la fréquence de résonance  $f_+$  (entourée dans le spectre de la figure (b)) en faisant tourner le champ externe de norme constante  $B = 2$  mT dans le plan  $\theta_B = 90^\circ$  entre  $\phi_B = 0^\circ$  et  $\phi_B = 90^\circ$ . (d) Après s'être placé en  $\phi_B$  tel que  $f_+(\phi_B)$  soit maximale dans  $[0^\circ, 90^\circ]$  on fait tourner le champ magnétique de norme constante entre  $\theta_B = 90^\circ$  et  $\theta_B = 0^\circ$ . Les deux courbes de (c) et (d) sont ensuite ajustées simultanément, permettant de déterminer  $\theta$  et  $\phi$  avec une incertitude de  $\pm 2^\circ$  (cette erreur est surtout liée à l'incertitude sur l'alignement entre la bobine 3-axes que nous utilisons pour générer le champ et les axes  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  définis par les actuateurs de l'AFM).

On applique pour cela un champ magnétique externe  $\mathbf{B}$ , de norme fixe (généralement  $|\mathbf{B}| = 2$  mT), mais d'orientation variable, définie par les angles  $(\theta_B, \phi_B)$ . Ce champ est généré au moyen de trois bobines respectivement alignées sur les axes  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  de l'AFM. La position des fréquences  $f_+$  et  $f_-$  est alors déplacée par effet Zeeman, en fonction de la projection du champ  $B_{NV} = \mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{NV}$  sur l'axe du centre NV, défini par  $\theta$  et  $\phi$ . On commence par changer l'orientation du champ sur un quart de cercle, dans le plan horizontal de l'expérience  $(\hat{x}, \hat{y})$ , en faisant varier  $\phi_B$  par pas de  $5^\circ$ , avec  $\theta_B = 90^\circ$ . En suivant la position de l'une des raies, par exemple  $f_+$ , en fonction de l'orientation de  $\mathbf{B}$ , on enregistre alors une courbe telle que présentée en figure 2.13(c). Avec cette mesure, on repère la projection approximative de l'angle  $\phi$  du centre NV. On peut alors se placer en  $\phi_B$  tel que  $f_+$  soit maximale, puis faire varier  $\theta_B$ , depuis le plan  $\theta_B = 90^\circ$ , jusqu'à  $\theta_B = 0^\circ$ . On obtient alors une seconde courbe, comme celle de la figure 2.13(d). L'ajustement simultané de ces deux courbes permet très simplement de déterminer très précisément un unique couple  $(\theta, \phi) \in [0, \pi]^2$  dans le référentiel des bobines. Comme l'alignement de celles-ci avec les axes de l'AFM n'est jamais parfait, on mesure finalement  $\theta$  et  $\phi$  avec une précision de  $\pm 2^\circ$ .

En résumé, nous disposons d'un magnétomètre à balayage de centre NV, constitué par un microscope optique couplé à un AFM, dont la pointe est fonctionnalisée avec un centre NV unique. Nous pouvons déterminer les propriétés liées au spin électronique de ce centre NV ainsi que son orientation. Ce système permet d'imager le champ magnétique au-dessus d'un échantillon, en mesurant en chaque point le déplacement Zeeman du centre NV. La question naturelle qui se pose, comme pour tout dispositif d'imagerie, est celle de la résolution spatiale.

## 2.2.4 Résolution spatiale de l'instrument

Intrinsèquement, la mesure de champ magnétique par le centre NV du diamant est limitée spatialement par l'extension de sa fonction d'onde de spin électronique. Celle-ci est dans les faits extrêmement localisée, sur quelques sites atomiques seulement [146]. **La résolution spatiale ultime du magnétomètre est donc atomique** [14].

Ceci étant dit, on peut ensuite distinguer deux critères pour la résolution spatiale, suivant que l'on s'intéresse aux détails que l'on peut résoudre dans les cartographies du champ magnétique, ou au « pouvoir séparateur » de l'instrument, c'est-à-dire à sa capacité à discerner deux sources de champ magnétique distinctes dans l'échantillon.

**Résolution spatiale - champ magnétique** La résolution spatiale du magnétomètre, en termes de détails observables dans les cartographies de champ magnétique, n'est pas limitée par la taille du centre NV, mais par l'imprécision sur le positionnement de la pointe d'AFM. Celui-ci est de l'ordre du nanomètre ou inférieur. **La résolution spatiale en champ magnétique est donc du l'ordre du nanomètre.**

**Résolution spatiale - aimantation** Considérons maintenant le niveau de détail auquel on peut accéder dans les structures d'aimantation (ou de courant) dont le champ émane. Dans ce cas la résolution est limitée par la *hauteur de vol*, la distance séparant le centre NV de la couche magnétique à étudier.



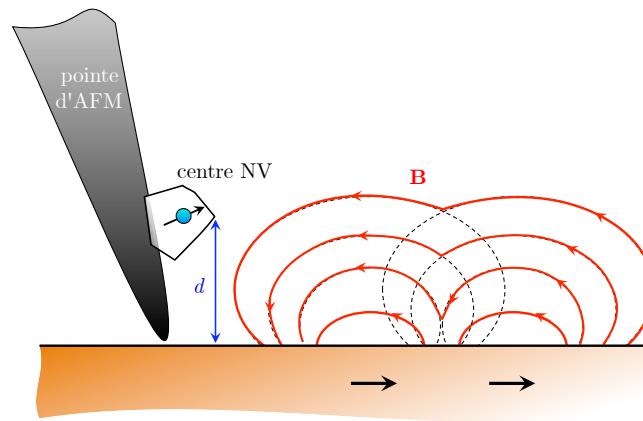


FIGURE 2.14 : **Hauteur de vol et résolution spatiale.** Schéma illustrant le positionnement imparfait du centre NV par rapport à l'extrémité de la pointe d'AFM. La hauteur de vol  $d$  est en conséquence plus grande que la taille du cristal de diamant. Les lignes rouges schématisent le champ magnétique produit par deux dipôles séparés par  $\sim d$ . Lorsque le centre NV est trop éloigné de la surface, le champ des deux dipôles ne fait plus qu'un, et on ne peut plus les discerner. Ceci définit la résolution spatiale du microscope comme étant la hauteur de vol  $d$ .

En effet, si l'on se représente les sources de champ magnétique comme de petits dipôles, à grande distance, la figure de champ créée par ceux-ci s'étale linéairement avec la hauteur de vol. On retrouve ainsi une sorte d'équivalent du critère de Rayleigh en optique, en ce sens que, pour séparer les contributions de deux textures d'aimantation dans l'image de champ magnétique, il faudra que ces textures soient séparées d'au moins la hauteur de vol.

Cet aspect sera rediscuté au chapitre 3, où nous introduirons une méthode simple permettant de mesurer cette hauteur de vol, et donc la résolution de l'instrument, avec une précision nanométrique. Pour notre microscope, la hauteur du centre NV est toujours de l'ordre de 50 – 100 nm, quelle que soit la taille des nano-diamants utilisés. Cette imprécision dans le positionnement du centre NV, dont on souhaiterait qu'il réside à l'extrémité de la pointe d'AFM, provient de l'étape d'accrochage, comme illustré en figure 2.14. Il est possible que, pour de petits cristaux de diamant ( $\varnothing \lesssim 10$  nm), l'utilisation de poly-L-lysine conduise à un déplacement du cristal le long de la pointe par capillarité. Il en résulte que **la résolution spatiale en aimantation de notre instrument est de l'ordre de 50 – 100 nm.**

Afin d'améliorer cette résolution, deux pistes peuvent être poursuivies. La première consisterait à travailler sur l'étape d'accrochage, en essayant d'autres approches (notamment l'utilisation d'un polymère différent), ou en changeant la forme de la pointe à son extrémité. La seconde option est d'utiliser des pointes massives en diamant, dans lesquelles le centre NV est directement implanté à proximité [147]. De telles pointes ont notamment été développées par le groupe de P. Maletinsky à l'université de Bâle.

CARACTÉRISTIQUE	VALEUR
taille des images (max.)	$30 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$
temps d'acquisition (par pixel)	<i>iso-B</i> : $\sim 100 \text{ ms/px}$ (cf. §2.3)
	cartographie complète : $\sim 500 \text{ ms/px}$ (cf. §2.3)
sensibilité (typ.)	$10 \mu\text{T}/\sqrt{Hz}$
résolution ( <b>B</b> )	$\sim 1 \text{ nm}$
résolution ( <b>M</b> )	hauteur de vol ( $\sim 80 \text{ nm}$ )
conditions de fonctionnement	température : 300 K (fonctionne en principe à température cryogénique)
	environnement : air à pression atmosphérique

TABLE 2.1: Récapitulatif des caractéristiques de l'instrument

En conclusion, nous disposons d'un **nouvel instrument d'imagerie utilisant un spin unique comme magnétomètre**, ce qui a pour conséquence notable de ne pas perturber en principe l'échantillon. Nous avons résumé les principales caractéristiques de notre magnétomètre, le microscope à balayage de centre NV, dans le tableau 2.1. On soulignera en particulier que le fait de pouvoir travailler à température ambiante et à pression atmosphérique permet de n'avoir pour ainsi dire aucun pré-requis spécial sur les échantillons mesurés. La question est maintenant de savoir si ces caractéristiques sont suffisantes pour observer des parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces, ce que nous allons discuter dans la partie qui suit.

## 2.3 Imagerie d'une paroi de domaine par microscopie NV

Comme nous l'avons mentionné plus tôt, la microscopie à balayage de NV consiste à déplacer un centre NV unique dans le champ magnétique de fuite d'un échantillon. La mesure en chaque point d'un spectre d'ODMR permet de mesurer le déplacement Zeeman du centre NV. On reconstruit ainsi des cartographies, du déplacement Zeeman, qui est essentiellement proportionnel au champ magnétique projeté sur l'axe du centre NV. Selon le temps de mesure et de l'information recherchée, plusieurs modes d'imagerie peuvent être utilisés. Dans cette partie, nous commencerons par présenter un échantillon typique que nous avons étudié dans ce manuscrit, à savoir une paroi de domaine contenue dans une piste ultra-mince de Ta|CoFeB|MgO (§2.3.1). Nous introduirons ensuite les deux modes d'imagerie utilisés pendant cette thèse : tout d'abord une mesure complète du déplacement Zeeman (§2.3.2), et ensuite, une mesure plus rapide de lignes *iso-champ* (§2.3.3).

### 2.3.1 Échantillon

L'échantillon que nous allons étudier dans la fin de ce chapitre nous a été fourni par le groupe NOMADE de l'IEF (Université Paris-Saclay et CNRS). Il a été fabriqué à partir d'un wafer de Ta(5)|Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>(1)|MgO(2) (épaisseurs en nanomètres), protégé de l'oxydation par une couche supplémentaire de Ta(5). Les quatre couches

ont été déposées par pulvérisation sur un substrat amorphe de  $\text{Si}|\text{SiO}_2(100\text{ nm})$ , dans un réacteur PVD Timaris produit par Singulus Tech. Après dépôt, le film a été structuré par lithographie électronique suivie d'une étape de gravure ionique, par K. García, pour obtenir la structure présentée en figure 2.15(a). Une seconde étape de lithographie électronique a permis de déposer l'antenne en or utilisée pour l'excitation micro-onde de la résonance de spin du centre NV.

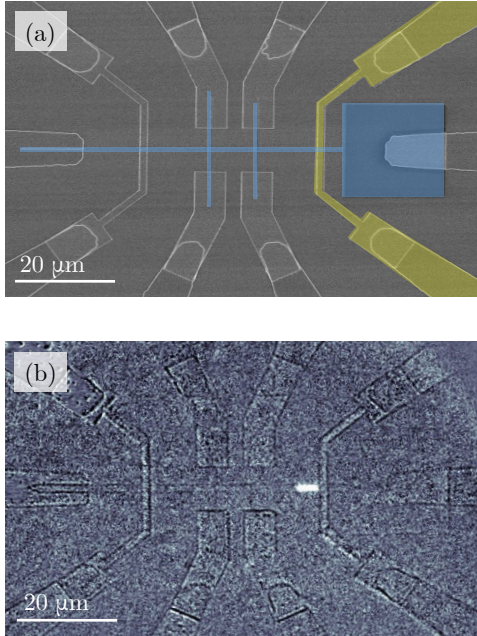


FIGURE 2.15 : **Piste de Ta|CoFeB|MgO.** (a) Image par microscopie électronique à balayage d'un échantillon typique de ceux que nous étudierons dans cette thèse. Il est constitué d'une couche ferromagnétique ultra-mince gravée sous forme de pistes, en bleu, et de l'antenne en or utilisée pour exciter la résonance de spin du centre NV, en jaune. (b) Image du même échantillon en microscopie Kerr. Un domaine a été nucléé par le champ d'Ørsted d'une impulsion de courant circulant dans l'antenne en or. Ce domaine magnétique apparaît en blanc dans l'image. La paroi que nous étudions dans la suite du chapitre correspond à la bordure gauche du domaine.

Après avoir saturé l'échantillon grâce à un électro-aimant, sous un microscope à effet Kerr, des parois ont été nucléées en faisant circuler une impulsion de courant dans l'antenne en or. De cette façon, le champ d'Ørsted permet de retourner un domaine près de l'antenne micro-onde. L'image de microscopie Kerr du domaine nucléé est présentée en figure 2.15(b).

**Allure du champ prédit pour cet échantillon** Avant de s'intéresser directement aux résultats d'une image par microscopie NV de l'échantillon, nous allons discuter qualitativement du champ attendu au-dessus d'une paroi de domaine dans une piste magnétique. Cette discussion s'appuie sur la figure 2.16.

Tout d'abord, rappelons qu'une couche **infinie uniformément aimantée**, même si elle présente des pôles magnétiques sur ses surfaces inférieure et supérieure, ne présente **aucun champ de fuite**. On s'attend donc à ne mesurer aucun champ magnétique au centre de la couche magnétique. Seules les régions où l'aimantation n'est pas invariante par translation seront à l'origine d'un champ. Ces régions sont **les bordures de la piste magnétique, et la paroi de domaine**.

On peut ainsi comprendre les résultats du calcul numérique présenté en figure 2.16(b), du champ de fuite d'une paroi contenue dans une piste de 1 nm d'épaisseur. Le calcul est réalisé pour une distance  $d = 100\text{ nm}$  de la couche, avec  $M_s = 1\text{ MA/m}$ , qui est une valeur typique dans les couches ultra-minces. La procédure suivie

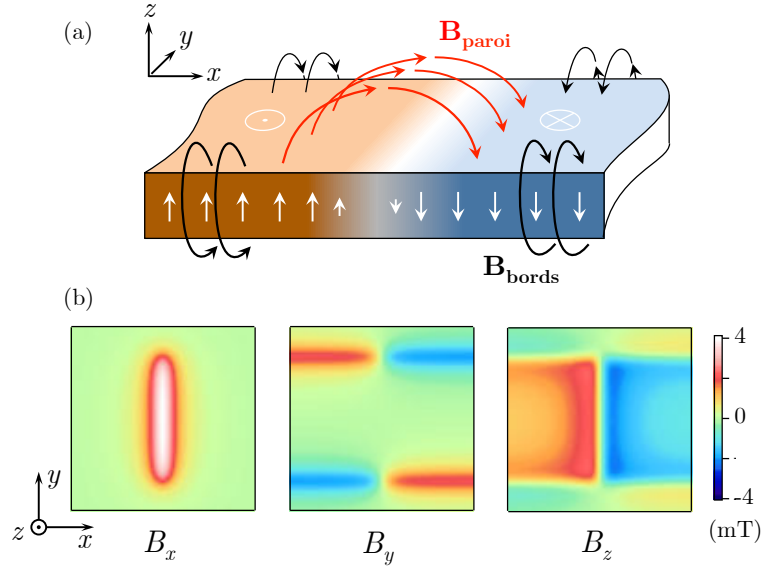


FIGURE 2.16 : **Champ attendu au-dessus d'une paroi dans une piste ferromagnétique.** (a) Schéma de la piste magnétique contenant une paroi. Le champ que l'on souhaite mesurer est le champ magnétique issu de la paroi (figur  par les fl ches rouges).   cela s'ajoute un champ suppl mentaire, issu des bords de la piste magn tique (indiqu  par les fl ches noires). (b) Calcul des trois composantes du champ magn tique de fuite,   100 nm au-dessus d'une piste ferromagn tique ultra-mince de  $1 \mu\text{m}$  contenant une paroi. Les param tres utilis s sont des param tres typiques pour les films ultra-fins,   savoir  $M_s = 1 \text{ MA/m}$  et une  paisseur  $t = 1 \text{ nm}$ . La proc dure de calcul est d taill e en annexe A. Lors d'une mesure par microscopie   centre NV, on sondera la projection de ces composantes sur l'axe du centre NV.

est d crite en annexe A. La composante  $B_x$  n'est associ e qu'au champ de la paroi, tandis que la composante  $B_y$  du champ est li e aux bords de la piste, avec un changement de signe   la travers e de la paroi. Enfin, la composante  $B_z$  est essentiellement repr sentative de la direction de l'aimantation dans la couche   aimantation perpendiculaire. Avec le microscope   centre NV, on mesurera essentiellement la valeur absolue d'une projection de ces trois composantes, sur l'axe du centre NV,  $B_{NV} = |\cos(\theta) B_z + \sin(\theta) \cos(\phi) B_x + \sin(\theta) \sin(\phi) B_y|$ .

Nous pouvons d sormais r aliser une image du champ de fuite de la paroi nucl e dans la piste magn tique avec le microscope   balayage de NV, et comparer qualitativement l'image obtenue aux pr dictions.

### 2.3.2 Cartographie compl te de champ

Une fa on na ve de construire des cartes de champ magn tique serait de mesurer en chaque point un spectre complet de r sonance magn tique, comme ceux pr sent s en figure 2.4. Malheureusement le temps n cessaire   l'acquisition de tels spectres pour un centre NV unique est de l'ordre de la minute, ce qui rend cette m thode extr mement lente. Il est toutefois possible d'obtenir autant d'information en un temps beaucoup plus raisonnable.

L'information de champ magnétique statique n'est en effet contenue que dans la position spectrale des résonances  $f_+$  et  $f_-$ . Il suffit donc de repérer celles-ci, ce qui n'implique pas l'acquisition de spectres ODMR étendus. Dans la pratique, on balaye la fréquence de la micro-onde sur une petite fenêtre (largeur d'une vingtaine de MHz) autour d'une des résonances [figure 2.17(b)]. Lorsque le champ magnétique change et que la résonance se déplace la fenêtre est recentrée sur le minimum du spectre. Bien qu'il faille alors échantillonner suffisamment l'image pour éviter d'avoir un gradient de champ trop important entre deux points (qui conduirait à ce que la raie sorte complètement de la fenêtre), on réduit le temps d'acquisition à des durées inférieures à la seconde par point. Tous les spectres ainsi acquis sont ajustés *a posteriori* par des gaussiennes pour retrouver le déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV} \propto B_{NV}$ .

Un exemple d'une telle cartographie est donné en figure 2.17, au-dessus de la piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO dans laquelle nous avons nucléé une paroi de domaine magnétique. Nous nous attarderons à comparer quantitativement ces images de champ à des simulations dans les chapitres suivants. On peut cependant noter comme attendu la présence de champ magnétique aux bords de la piste, auquel s'ajoute en travers de celle-ci un fort champ, provenant de la paroi de domaine. Nous avons donc bien atteint notre premier objectif : **il nous est possible d'imager les parois de domaine dans des couches ultra-minces ferromagnétiques.**

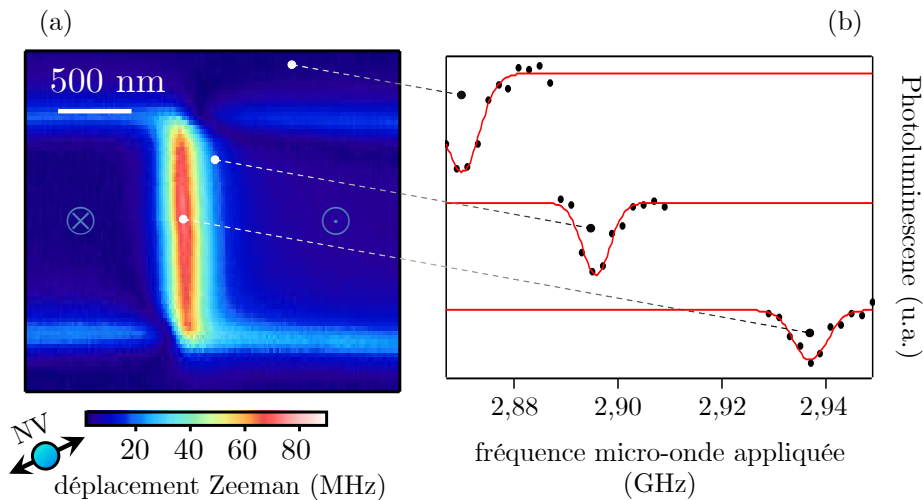


FIGURE 2.17 : Image d'une paroi de domaine par microscopie à balayage de NV. (a) Cartographie du shift Zeeman de la raie supérieure du centre NV au-dessus d'une paroi de domaine dans une piste magnétique de Ta|CoFeB|MgO. Chaque point correspond au centre de l'ajustement d'un spectre de résonance magnétique, comme présenté en (b). On soulignera le fait que le déplacement Zeeman est en bonne approximation proportionnel à la projection du champ magnétique  $B_{NV}$  sur l'axe du centre NV. C'est pourquoi nous avons indiqué l'axe du NV et donc de la projection mesurée par une petite flèche. L'image présente donc une seule composante du champ, correspondant à un mélange des trois composantes tracées en figure 2.16. (b) Exemples des données recueillies pour trois des points de l'image. Une fenêtre de 20 MHz comportant 11 points est déplacée au cours de l'image afin de suivre la position de la résonance. L'acquisition d'un point du spectre ODMR prend 40 ms, qui résulte en un temps total d'acquisition de 440 ms par pixel de l'image.

**Caractère vectoriel de la mesure** Dans la figure 2.17, nous n'avons mesuré qu'une seule projection du champ magnétique de la paroi de domaine sur l'axe du centre NV. Celui-ci est cependant caractérisé par trois composantes distinctes, indiquées en figure 2.16(b). Afin de comparer dans les détails le champ magnétique attendu pour une structure, il nous est possible de réaliser des images de composantes différentes du champ, en changeant l'orientation du centre NV utilisé pour la mesure. Pour cela, on peut soit utiliser une nouvelle pointe, soit simplement décrocher le nano-diamant utilisé en scannant en contact de l'échantillon. On peut ensuite le raccrocher, et mesurer son orientation jusqu'à obtenir une orientation convenable. Nous avons illustré une telle mesure vectorielle en figure 2.18, en mesurant la même paroi de domaine avec 4 centres NV différents, d'orientations repérées par les angles  $(\theta, \phi)$ .

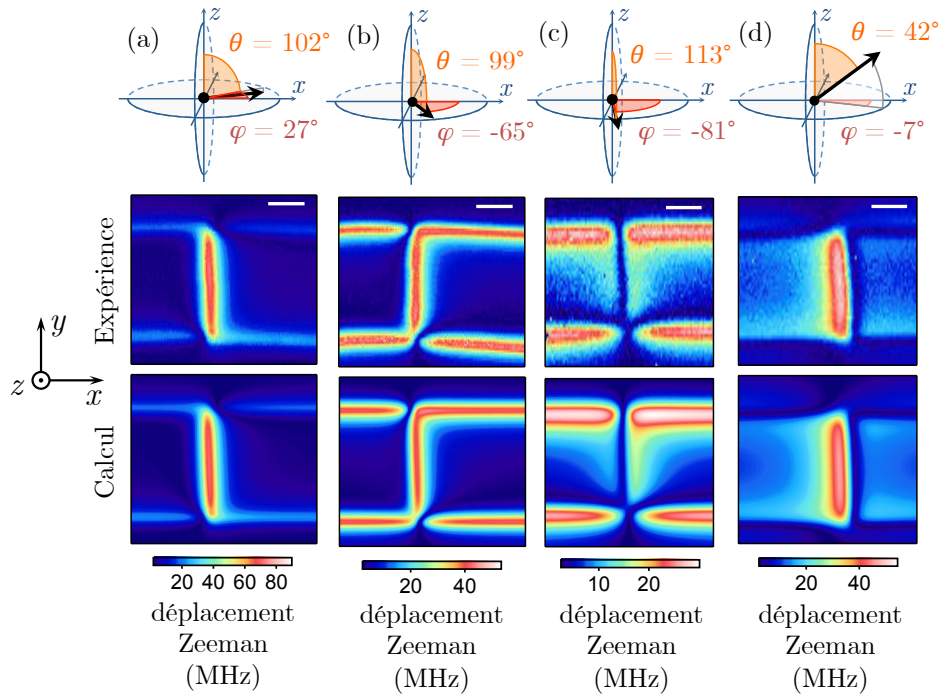


FIGURE 2.18 : **Image d'une même paroi de domaine avec différents centres NV.** (a), (b), (c) et (d) Cartographie du shift Zeeman de la raie supérieure du centre NV au-dessus de la même paroi de domaine dans une piste magnétique de Ta|CoFeB|MgO, pour quatre orientations de NV différentes. Celles-ci sont définies par les angles  $\theta$  et  $\phi$ . Les images expérimentales sont comparées à des simulations, dont l'obtention est décrite en annexe A. On constate un très bon accord visuel entre la théorie et l'expérience, quelle que soit la composante du champ sondée.

### 2.3.3 Mode d'imagerie rapide : « iso-B »

Si l'imagerie quantitative que nous venons juste de présenter est une technique satisfaisante, elle s'avère tout de même relativement lente. Dans un cas où nous souhaiterions simplement repérer des zones de champ magnétique au-dessus d'un échantillon, sans pour autant avoir le besoin d'être quantitatif, il est possible d'accélérer encore la prise de données. Cette méthode, que nous appellerons « iso-B » ou « iso-champ », est illustrée en figure 2.19.

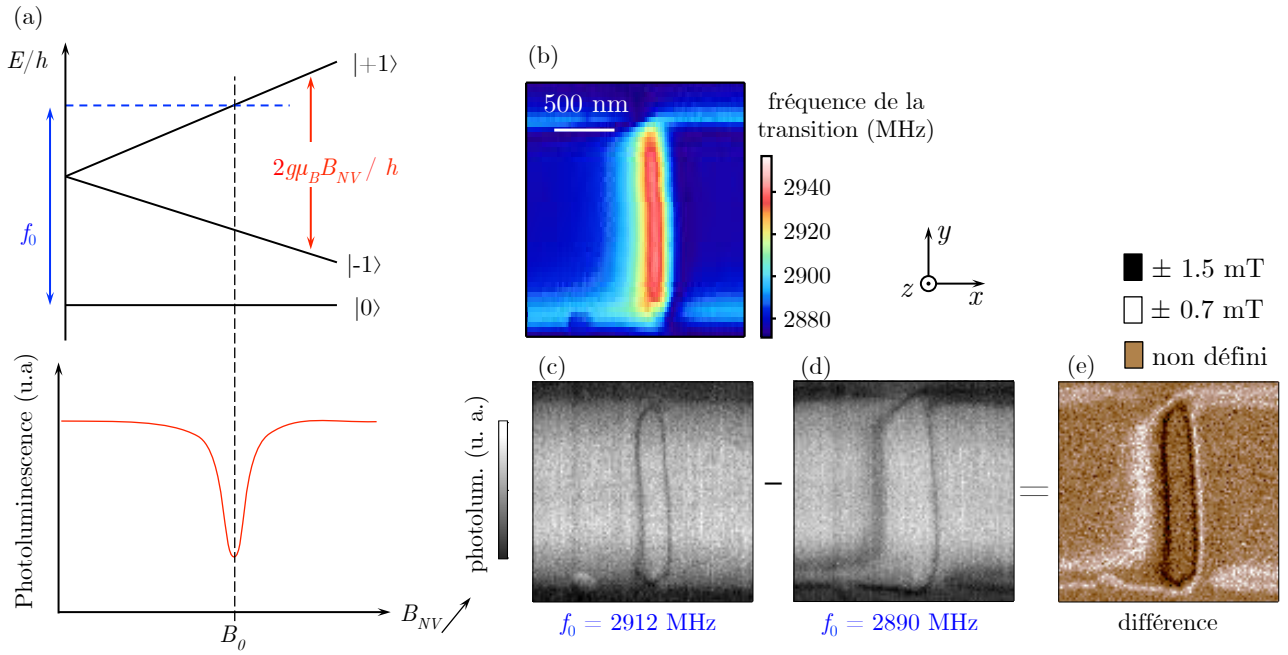


FIGURE 2.19 : **Mode d'imagerie « iso-B »**. (a) Évolution de l'énergie des sous-niveaux de spin du centre NV, en fonction du champ magnétique. Quand on applique une fréquence micro-onde fixe  $f_0$ , il existe une unique valeur de champ positive  $B_0$  telle que  $f_0$  soit accordée sur la transition  $|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle$ , pour  $|B_{NV}| = B_0$ . Pour cette valeur de champ, la photoluminescence du centre NV chute. (b) Cartographie complète de la position de la raie supérieure  $f_+$  du spectre d'ODMR du centre NV au-dessus d'une paroi de domaine, similaire à celle présentée en figure 2.17. Chaque couleur correspond donc à une fréquence  $f_+$ . (c) et (d) sont des images du signal de photoluminescence du centre NV au-dessus de la même paroi, mais en appliquant seulement une fréquence,  $f_0 = 2912$  MHz ou  $f_0 = 2890$  MHz. Le trait noir correspond au contour, où la valeur du champ  $|B_{NV}| = B_0$  est telle que  $f_+ = f_0$ . L'image (e) est la différence entre les images (c) et (d). De cette façon on s'affranchit de toutes les fluctuations de lumière collectée non-relées à une résonance magnétique du NV.

L'idée centrale est de n'appliquer qu'une seule fréquence micro-onde  $f_0$ , tout en mesurant la photoluminescence du centre NV. Dans ce cas, il existe une unique valeur de champ magnétique  $B_0$  positive, telle que, lorsque  $|B_{NV}| = B_0$ ,  $f_0$  soit la fréquence d'une des transitions  $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$  ou  $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ . Dans ce cas, la photoluminescence du centre NV diminue car il quitte l'état brillant  $|0\rangle$ . On verra alors une ligne sombre apparaître dans les images, correspondant au contour de champ magnétique  $|B_{NV}| = B_0$ .

Il arrive toutefois que des variations de luminescence ou du nombre de photons collectés optiquement se produisent, sans pour autant être liées au champ magnétique (émission ou diffusion de photons par l'échantillon, modification de la photoluminescence du NV en changeant la densité locale d'états optiques, etc.). Pour pallier ces fluctuations du fond lumineux, nous réalisons en fait deux images simultanément. En chaque point de l'image, on applique alternativement deux fréquences micro-onde fixées. On enregistre ainsi deux contours de champ magnétique [figure 2.19(c) et (d)]. En faisant la différence entre ces images, on rejette toute fluctuation du fond en ne gardant que les deux contours magnétiques [figure 2.19(e)].



La méthode *iso-B* présente deux intérêts majeurs par rapport à une cartographie complète du champ magnétique. Le temps d'acquisition est tout d'abord divisé par un facteur  $\sim 5$  par rapport aux cartographies complètes de champ, puisque l'on n'applique que deux fréquences micro-onde au lieu de la dizaine typiquement utilisée pour les images quantitatives. Une telle image est donc acquise pour un temps d'acquisition entre 20 et 100 ms par point. D'autre part, on n'a plus de contrainte directe sur l'échantillonnage spatial des images. Dans une image quantitative, on doit en effet suivre, point après point, le déplacement de la fréquence de résonance magnétique. Si les gradients sont très forts, on peut perdre la position de la raie. Dans une image *iso-B*, on applique toujours la même fréquence, ce qui peut permettre de balayer rapidement de grandes zones de l'échantillon. Lorsque les gradients sont trop forts, on risque simplement de voir une interruption du contour de champ.

En conclusion de cette partie, nous avons montré qu'il était possible par microscopie à balayage de centre NV d'imager des parois de domaines dans des couches ultra-minces ferromagnétiques. Nous avons également introduit deux techniques, l'une lente, mais quantitative, et l'autre plus rapide, pour imager une paroi. Nous allons maintenant montrer sur un cas concret comment ce nouvel outil peut être utilisé pour étudier la physique des parois de domaine.

## 2.4 Sauts de Barkhausen thermiquement activés

Alors que le centre NV est un spin unique, qui ne perturbe en principe pas les structures d'aimantation observées, la mesure par microscopie à balayage de centre NV peut altérer l'échantillon. Nous traiterons dans cette partie de sauts de paroi thermiquement activés entre différents sites de piégeage, et montrerons que le laser vert de notre expérience, utilisé pour exciter le centre NV, modifie la dynamique de ces sauts. Nous présenterons ensuite une modélisation de ce phénomène, s'appuyant sur la diminution de l'énergie de la paroi causée par un chauffage localisé. Cette modélisation permet non seulement de s'affranchir des perturbations induites par le laser, mais également de les utiliser à notre avantage pour étudier la répartition des sites de piégeage de la paroi.

### 2.4.1 Observation de sauts de paroi

Lorsque nous avons imagé pour la première fois des parois de domaine de manière quantitative, et donc sur des durées très longues, il nous est arrivé de l'observer se déplacer brusquement vers ce qui semblait être une autre position dans la piste ferromagnétique comme dans l'image de la figure 2.20(b). De tels « sauts » de parois sont bien connus dans l'acquisition de cycles d'hystérésis, depuis les travaux de 1919 de Barkhausen [148], dont ils tirent leur nom. Les sauts de Barkhausen sont dus au fait que les parois de domaine restent piégées sur des défauts du matériau. Quand le champ magnétique externe utilisé pour mesurer un cycle d'hystérésis augmente, les parois finissent par quitter leur piège. Elles progressent alors brutalement dans le matériau, en retournant toute une portion de domaine, jusqu'à un nouveau défaut. Ceci fait apparaître des profils en escalier dans la courbe d'hystérésis près du champ coercitif.



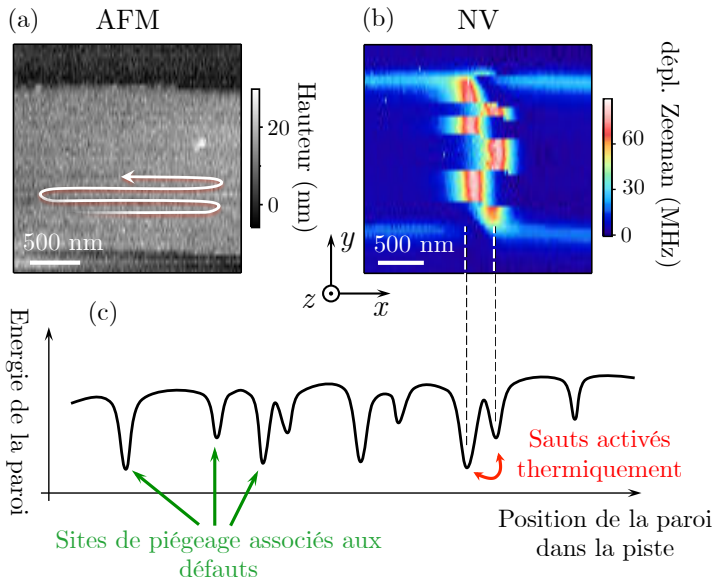


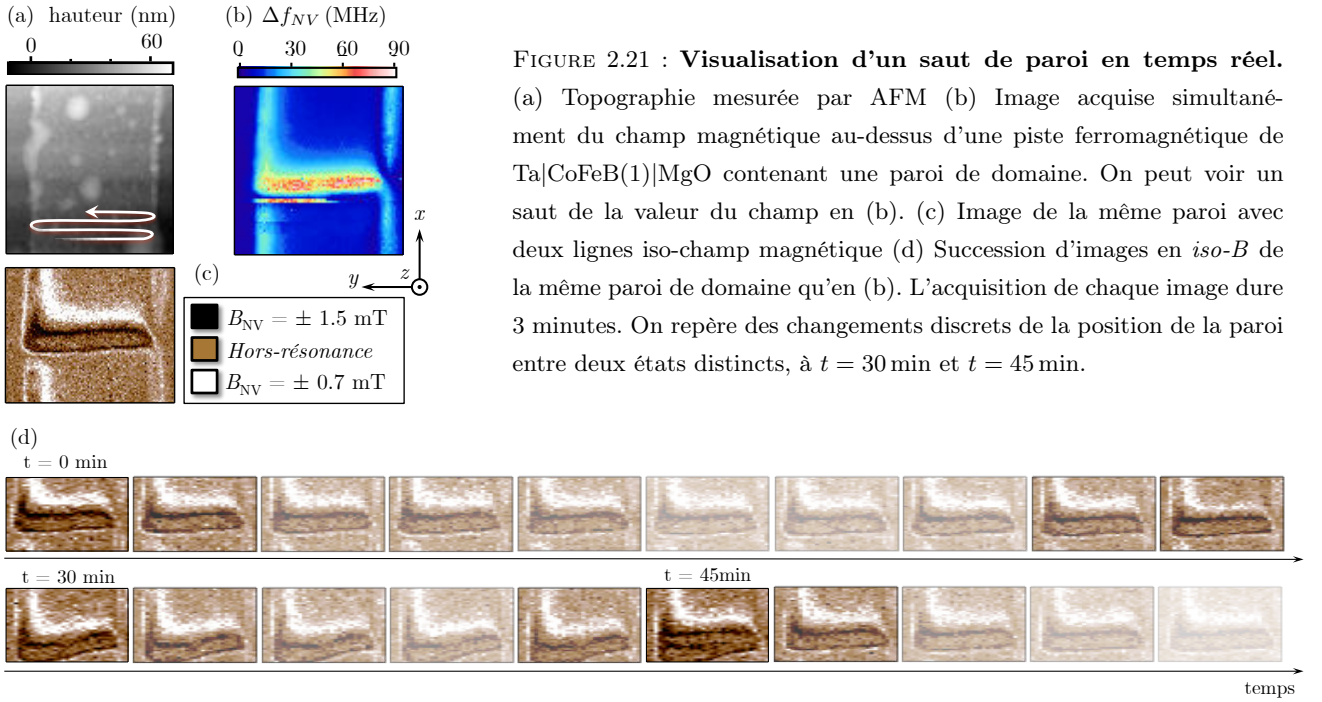
FIGURE 2.20 : **Saut de paroi pendant l'acquisition d'une image.** (a) Topographie mesurée par AFM de la piste ferromagnétique contenant la paroi de domaine. La flèche blanche indique la direction dans laquelle le balayage de l'échantillon est effectué pour enregistrer l'image du champ magnétique. (b) Cartographie du déplacement Zeeman du centre NV correspondant à la même acquisition que (a). On observe clairement deux positions distinctes dans le champ de fuite de la paroi de domaine, traduisant possiblement deux positions prises par celle-ci pendant l'image. (c) Schéma décrivant un potentiel typique ressenti par la paroi de domaine en fonction de sa position dans la piste magnétique.

Dans le cas de notre expérience, aucun champ externe n'est appliqué. Cependant, le film magnétique présente bien des imperfections, à l'origine de puits de potentiel dans lesquels la paroi vient se piéger. On pourrait donc interpréter l'image de la figure 2.20(b) comme une succession de sauts de Barkhausen entre deux pièges consécutifs, mais en l'absence de champ magnétique et donc probablement **thermiquement activés**.

Afin de vérifier cette hypothèse d'un saut de la paroi, nous avons cherché à réaliser plusieurs séries d'images rapides de celle-ci, en espérant la visualiser dans plusieurs configurations stables distinctes. Pour augmenter la dynamique des acquisitions, nous avons imagé la paroi en mode *iso-B*. Il a ainsi été possible de réaliser plusieurs images successives de la paroi, avec une résolution temporelle de l'ordre de 3 min par image, contre environ 1 h pour la cartographie de la figure 2.20(b). Cette succession d'images de la paroi est présentée en figure 2.21. On peut voir sur la topographie de la piste magnétique [figure 2.21(a)] des résidus de la résine utilisée pour lithographier la piste<sup>6</sup>. Ceux-ci ne sont pas magnétiques, mais permettent de recalcr des images successives avec précision.

Comme escompté, en observant en continu la paroi, nous avons mis en évidence des sauts discrets de celle-ci, entre deux sites bien définis (aux temps  $t = 30$  min et  $t = 45$  min sur l'image 2.21). Pendant de longues périodes entre ces sauts, la paroi ne se déforme pas. Nous avons ainsi bien affaire à des sauts de Barkhausen entre deux sites de piégeage distincts. À la différence de ceux observés sous champ dans les cycles d'hystérésis, nous avons ici la première observation de ce phénomène de manière directe dans une couche ultra-mince, sans champ magnétique et sur des échelles de l'ordre de la centaine de nanomètres. Nous avons donc cherché à pousser plus avant la compréhension de cette observation.

6. Il est possible de nettoyer la piste par un balayage de la pointe en contact de l'échantillon, ce qui a été réalisé dans la majorité des images de paroi de domaines magnétiques de ce manuscrit.



## 2.4.2 Influence du laser

Nous avons commencé par caractériser le profil spatial de la paroi dans les deux sites de piégeage. Ces deux sites seront dans toute la suite dénommés site « 1 » et « 2 ». Tout d'abord, nous avons imagé en *iso-B* la paroi dans les sites 1 et 2, avec un meilleur échantillonnage qu'en figure 2.21. Les deux images sont présentées en figure 2.22(a). À partir de ces images *iso-B*, il est possible de remonter au positionnement de la paroi dans la piste magnétique, avec une précision latérale de l'ordre de 30 nm. La procédure d'ajustement est décrite en annexe A. Nous avons ainsi déterminé deux profils différents pour la paroi, correspondant aux sites 1 et 2. Ces profils ont été reproduits en noir sur l'image AFM, en figure 2.22(b). Le profil du site 1 est celui d'une paroi rectiligne en travers de la piste, tandis que celui du site 2 correspond à une paroi tordue, plus longue. Comme le coût énergétique de la paroi dépend de sa longueur  $l_{\text{paroi}}$  [cf. chapitre 1], il semble que le site 2 corresponde à une configuration moins favorable énergétiquement que celle du site 1.

En raison de l'absence de champ, on peut subodorer que l'origine des sauts de Barkhausen que nous avons observés est uniquement thermique. Il est en conséquence apparu naturel de vérifier en premier lieu de l'influence de la puissance du laser  $\mathcal{P}_L$  servant à l'excitation du centre NV. On focalise en effet en continu une puissance allant jusqu'à  $\mathcal{P}_L \sim 1$  mW, sur moins d'un micromètre carré. Nous avons donc changé la puissance  $\mathcal{P}_L$  et mesuré de nouveau des séries de cartographies en mode *iso-B*, telles que présentées en figure 2.21. Néanmoins, afin d'augmenter encore la dynamique de notre acquisition, nous avons seulement imagé une petite portion de la paroi, de  $200 \times 200$  nm<sup>2</sup> [cf. figure 2.22(a)]. Cette fenêtre permet tout de même de discriminer les sites 1 et 2, en intégrant le signal dans la région indiquée par les rectangles pointillés.

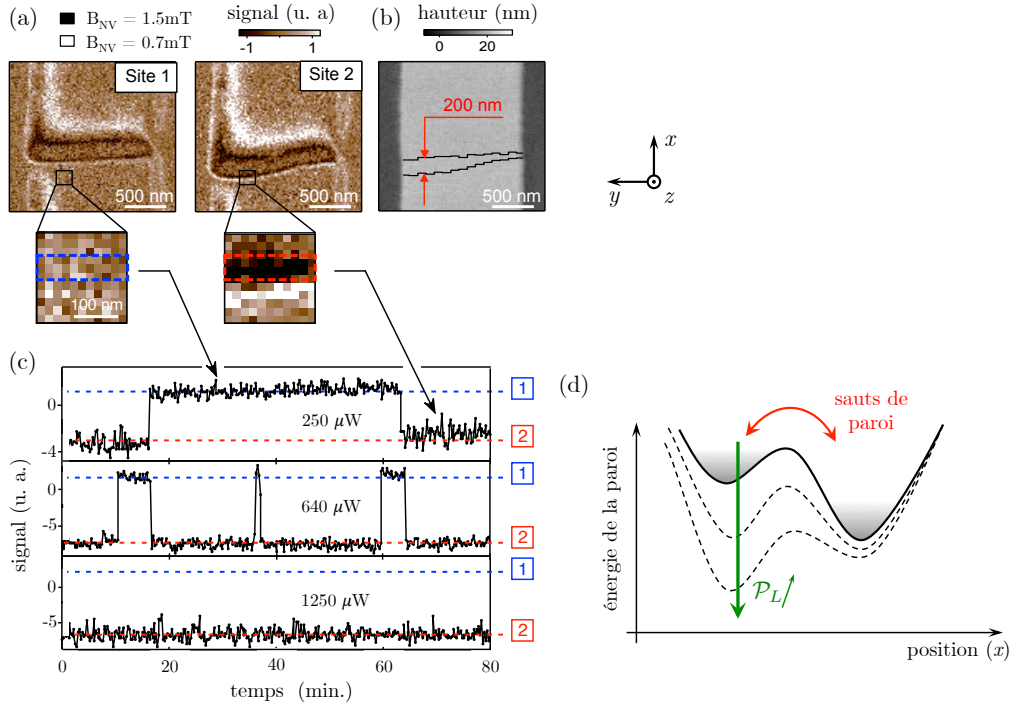


FIGURE 2.22 : **Influence du laser.** (a) Images *iso-B* des sites 1 et 2 de piégeage de la paroi de domaine. Les petits carrés indiquent la région d'observation, de 200 nm de côté, qui permet de distinguer les deux positions de la paroi. (b) Topographie mesurée par AFM, sur laquelle sont superposés (en noir) les profils de paroi obtenus en ajustant les images *iso-B* de (a). (c) Traces temporelles, correspondant à l'intégration du signal de la zone délimitée en pointillés dans les images en (a), pour différentes puissances laser. (d) Schéma décrivant le modèle qualitatif qui expliquerait les signaux télégraphiques de (c). La paroi se trouve dans une région comportant deux puits de potentiel. Lorsque  $\mathcal{P}_L$  augmente, on creuse un des puits de potentiel ce qui a pour effet d'y piéger la paroi.

Pour chaque puissance  $\mathcal{P}_L$ , nous avons ainsi mesuré un signal télégraphique, décrivant la position de la paroi [figure 2.22(c)] en fonction du temps. La résolution temporelle de ces acquisitions, correspondant au temps nécessaire pour mesurer une petite image, est de 10 s. La première conclusion que l'on peut tirer de ces courbes est que le phénomène de sauts de Barkhausen que nous observons est stochastique. En effet, la paroi saute d'un site à l'autre à des instants aléatoires. Ceci confirme l'idée d'un processus thermiquement activé.

La seconde conclusion concerne l'effet du laser. De manière assez surprenante, lorsque l'on augmente la puissance du laser  $\mathcal{P}_L$ , on n'observe pas que les sauts de la paroi entre les sites 1 et 2 aient lieu de plus en plus souvent. En effet, on aurait pu s'attendre à ce que le laser induise une élévation de la température dans la piste, et donc une augmentation de la fréquence des sauts de Barkhausen par accroissement de l'énergie thermique. Ce que l'on observe expérimentalement est que, plus la puissance du laser  $\mathcal{P}_L$  augmente, plus les sauts de Barkhausen du site 2 vers le site 1 se font rares, jusqu'à ce que la paroi soit en permanence au niveau du site 2.

Par ailleurs, on peut remarquer que la fenêtre de  $200 \times 200 \text{ nm}^2$ , servant à déterminer la position de la paroi dans l'expérience décrite en figure 2.22, est essentiellement centrée autour du site 2. Le laser est en conséquence

focalisé en permanence au niveau de ce site. On peut donc faire l'hypothèse que le laser tend à attirer la paroi, jusqu'à la piéger complètement à forte puissance ( $\mathcal{P}_L \sim 1$  mW dans notre expérience). Si cet effet est d'origine thermique, il doit être dû à un chauffage local, et non global de la piste magnétique.

Une interprétation qualitative de nos observations est schématisée en figure 2.22(d). Les deux sites de piégeage 1 et 2 de la paroi de domaine correspondent à des puits d'énergie potentielle le long de la piste. La paroi saute d'un puits à l'autre, de manière stochastique, du fait de l'agitation thermique. En augmentant la puissance laser  $\mathcal{P}_L$  au niveau du site 2, on creuse le puits de potentiel associé à ce site. La paroi finit par être piégée complètement sur le site 2, ce qui expliquerait les signaux télégraphiques de la figure (c).

**Mesure du temps nécessaire à une paroi pour sauter d'un site à l'autre** De façon à mieux comprendre l'effet du laser, nous avons donc essayé de quantifier la « traction » induite par le laser sur la paroi en mesurant la temps nécessaire à une paroi préparée dans l'état 1 (resp. 2) pour revenir dans l'état 2 (resp. 1) lorsque le laser est focalisé dessus. Comme le processus des sauts de Barkhausen thermiquement activés est par nature stochastique, il est important de mesurer un grand nombre d'événements pour connaître le temps caractéristique de saut d'une paroi. Pour ce faire, on pourrait acquérir des signaux télégraphiques tels que ceux de la figure 2.22(c). L'inconvénient de cette mesure est que la paroi est piégée à forte puissance laser et l'on observe alors plus d'événements. Nous avons donc utilisé une procédure différente, résumée en figure 2.23.

On commence par préparer la paroi dans un des sites ( $i$ ) avec le laser. La fenêtre de lecture de  $200 \times 200$  nm<sup>2</sup>, et donc le laser, est ensuite déplacée au niveau de l'autre site ( $j$ ). On mesure continuellement des images *iso-B* au niveau du site  $j$ , jusqu'à ce que la paroi change de conformation. On note alors le temps qu'il a fallu à la paroi, pour sauter du site  $i$  au site  $j$ . La paroi étant à cet instant préparée dans  $j$ , on peut recommencer en déplaçant la fenêtre de lecture sur le site  $i$ , et ainsi de suite. En répétant de nombreuses fois ( $\geq 10$ ) ces mesures, on obtient une distribution des temps pour le processus stochastique qu'est le saut de la paroi d'un site à l'autre. On construit de la sorte un histogramme, à une puissance laser  $\mathcal{P}_L$  donnée, des temps de transitions de  $i$  vers  $j$ . Ces histogrammes permettent de remonter à une probabilité cumulative  $p(t)$  d'avoir un saut entre 0 et  $t$  comme présenté en figure 2.23(c) et (d). Finalement, la probabilité est ajustée par une loi exponentielle

$$p(t) = 1 - \exp\left(-\gamma_{i \rightarrow j}^j \cdot t\right)$$

avec un taux caractéristique de saut  $\gamma_{i \rightarrow j}^j(\mathcal{P}_L)$  (l'indice dénote la direction du saut de paroi, et l'exposant l'endroit où le laser est focalisé).

On peut également avoir une idée du temps typique  $1/\gamma_{j \rightarrow i}^j$  que met la paroi à revenir au site  $i$  en focalisant le laser sur le site  $j$  en enregistrant une trace temporelle, tout en mesurant continuellement l'état de la paroi au niveau du même site  $j$ . Cependant dans ce cas, à haute puissance laser, le fait que la paroi soit piégée sous le laser ne permet que de borner le taux de transition. Par exemple, si on focalise le laser sur le site 2, au delà de  $\mathcal{P}_L \approx 900$   $\mu$ W on n'observe aucun événement de saut, même après trois heures de mesure continue comme dans le cas présenté en dernière courbe la figure 2.22(c). Dans cet exemple,  $\gamma_{2 \rightarrow 1}^2$  sera considéré comme inférieur à  $10^{-4}$  s<sup>-1</sup>.

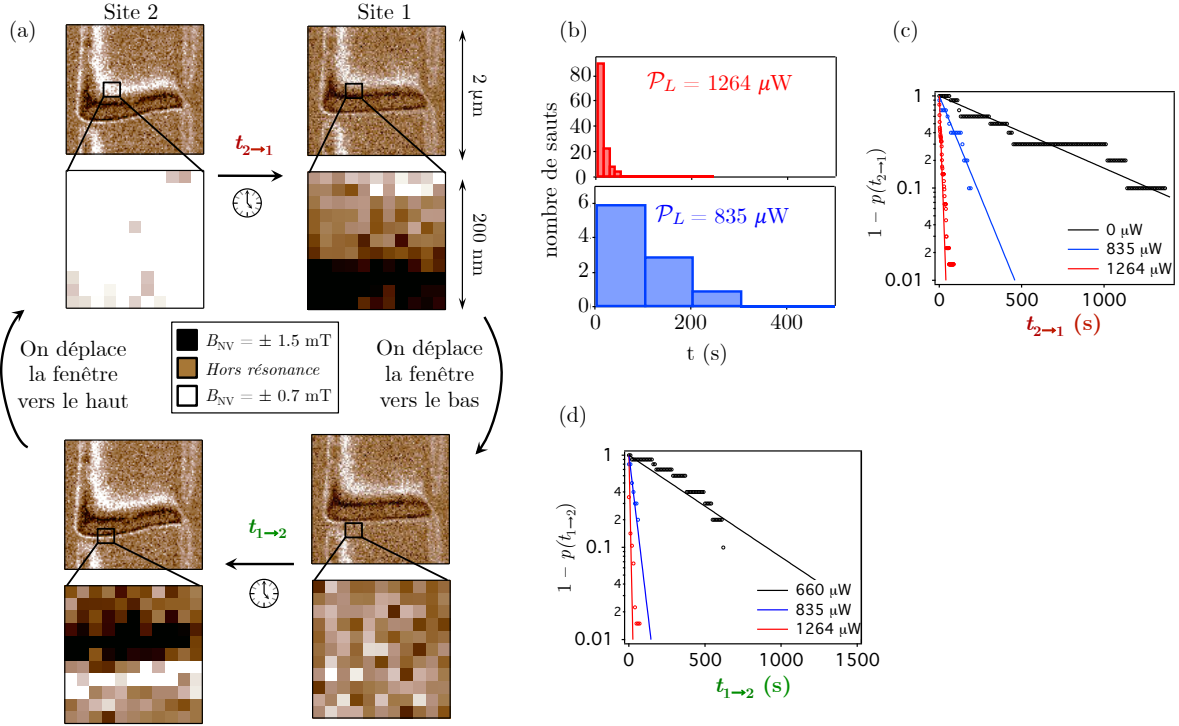


FIGURE 2.23 : **Détermination des taux de transition en fonction de la puissance laser.** (a) Schéma décrivant la procédure. On se place au niveau d'un des sites, et on enregistre des images *iso-B*. Dès que la paroi arrive au niveau du laser, on déplace la fenêtre de lecture sur l'autre site, puis on recommence. (b) Exemple d'histogramme des temps de sauts de la paroi de 2  $\rightarrow$  1, pour différentes puissances laser  $\mathcal{P}_L$ . (c) Probabilité que la paroi n'ait pas sauté du site 2 au site 1 au bout d'un temps  $t$ , le site 1 étant éclairé. (d) Probabilité que la paroi n'ait pas sauté du site 1 au site 2 au bout d'un temps  $t$ , le site 2 étant éclairé.

Les derniers taux de transition que l'on peut mesurer sont ceux à puissance laser nulle. Pour cela on commence par préparer la paroi dans le site  $i$  avec une forte puissance laser. On éteint ensuite le laser, que l'on ne rallume qu'à très faible puissance ( $250 \mu\text{W}$ ) pendant 5 s toutes les 2 minutes pour vérifier la présence ou non de la paroi au niveau du site  $i$ , et ce, jusqu'à constater qu'un événement s'est produit. Pour le site 2, nous avons répété l'expérience 10 fois et estimé un taux caractéristique de  $\gamma_{2 \rightarrow 1}(\mathcal{P}_L = 0 \text{ W}) = 1,8(1) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ , soit un retour au site 1 en 10 minutes environ. En revanche le site 1 est un site stable à puissance nulle. On n'observe jamais de saut spontané vers le site 2, métastable. C'est donc notre mesure qui, en figure 2.20 ou en figure 2.21, perturbe légèrement le système et induit des sauts de la paroi du site 1 vers le site 2. De manière générale, on veillera donc toujours à travailler à la puissance laser la plus faible possible pendant nos mesures. D'autre part, le fait que le site 2 soit métastable est en bon accord avec nos mesures de profil de paroi. Nous avons en effet mesuré que la paroi était plus longue dans le site 2.

L'ensemble des mesures de taux de transition pour différentes puissances du laser  $\mathcal{P}_L$  est rassemblé dans les courbes de la figure 2.24. Lorsque le laser est focalisé sur un des sites de piégeage, le taux de transition de la paroi vers ce site de piégeage semble augmenter exponentiellement avec  $\mathcal{P}_L$ . En revanche, si la paroi se trouve dans le site où le laser est focalisé, plus  $\mathcal{P}_L$  augmente, plus le taux de transition vers l'autre site diminue.

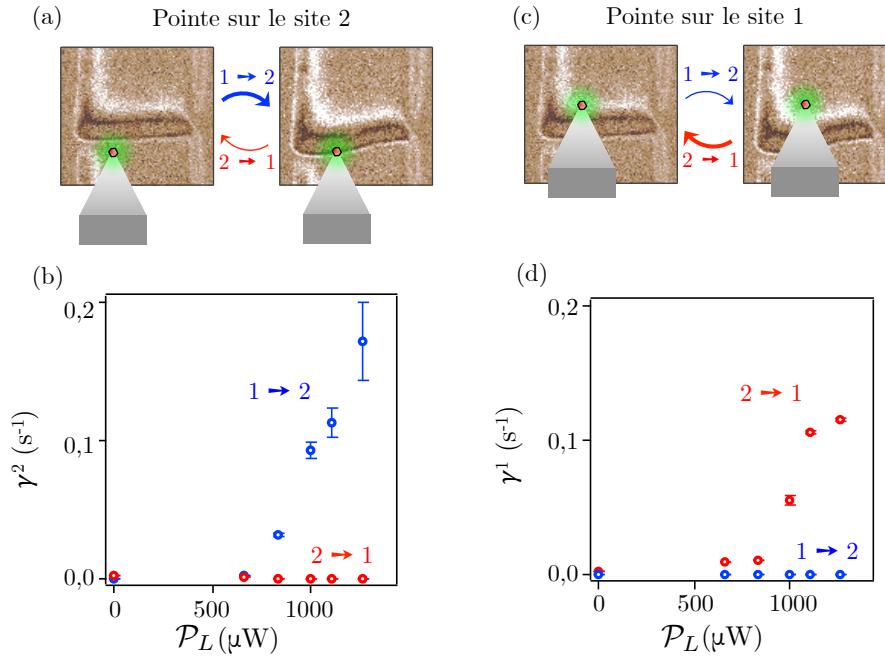


FIGURE 2.24 : **Ensemble des taux de transition mesurés en fonction de la puissance du laser.** (a) et (c) indiquent sur les images iso-champ les deux configurations possibles pour mesurer les taux de transition, à savoir le laser focalisé au niveau du site 2 en (a), ou au niveau du site 1 en (c). (b) Taux de transition  $\gamma^2(\mathcal{P}_L)$  de la paroi entre les deux sites de piégeage lorsque le laser est focalisé sur le site 2. (d) Taux de transition  $\gamma^1(\mathcal{P}_L)$  pour le laser focalisé proche du site 1, comme schématisé en (c). Dans chaque cas, le taux de transition semble augmenter exponentiellement avec  $\mathcal{P}_L$ , quand la paroi se rapproche du laser.

### 2.4.3 Modèle

Un modèle a été développé par Joo-Von Kim (IEF, Université d'Orsay) afin de rendre compte de nos résultats expérimentaux. Le détail en est donné en annexe de la publication [149] et nous allons ici simplement en présenter les grandes lignes. Ce modèle s'appuie sur une modélisation unidimensionnelle (1D) du paysage de potentiel de la paroi de domaine dans la piste magnétique, dans le même esprit que le modèle phénoménologique schématisé en figure 2.22(d). Du potentiel, on peut ensuite dériver des taux de transition de paroi, en appliquant la théorie des transitions de Kramer, où la thermique est introduite sous forme d'une force stochastique dans les équations d'évolution de la paroi. En introduisant les grandeurs micromagnétiques mesurées expérimentalement, on arrive à un bon accord quantitatif entre théorie et expérience.

Le choix du modèle 1D, pour le paysage de potentiel vu par la paroi, repose sur le fait que la piste est suffisamment étroite (1500 nm dans notre cas), en regard de la faible densité de défauts [150], densité que nous étudierons au §2.4.4. Ainsi, on peut considérer la paroi comme un objet quasi-rigide, dont la position dans la piste est essentiellement déterminée par celle de son centre de masse  $q$ , dans la direction  $\hat{x}$ .

**Potentiel et énergie d'une paroi piégée** Pour une position  $q$  dans la piste, on peut distinguer deux contributions énergétiques :

1. une baisse d'énergie du fait de la présence du défaut, à une position  $q_i$ . Ce terme va tendre à forcer la paroi à s'adapter aux défauts, et donc à se placer en  $q = q_i$ . Pour un défaut ponctuel, cette énergie potentielle s'exprime en fonction de  $q$  comme [23, 149]

$$-\frac{V_i}{\cosh^2\left(\frac{q-q_i}{\Delta_B}\right)}$$

où  $\Delta_B$  est la largeur de la paroi, introduite au chapitre 1.  $V_i$  correspond à la profondeur effective du puits de potentiel. Elle peut s'exprimer comme  $V_i = (3\sqrt{3}/2) (l_{\text{paroi}} t \Delta_B) \mu_0 M_s H_{p,i}$  en fonction du champ magnétique de dépiégeage  $H_{p,i}$  qu'il faudrait appliquer pour que la paroi quitte le défaut. La longueur de la paroi est  $l_{\text{paroi}}$  et  $t$  est l'épaisseur de la couche magnétique.

2. l'énergie linéique de la paroi. Comme présenté dans l'équation (1.2) du chapitre 1, la paroi de domaine a un coût énergétique intrinsèque, proportionnel au produit de sa longueur  $l_{\text{paroi}}$  par  $\sigma t$ . Ce coût va toujours tendre à diminuer la longueur de la paroi, lui conférant ainsi une élasticité. Nous montrerons au chapitre 4 que dans cet échantillon, la paroi est une paroi de Bloch, dont l'énergie surfacique à température nulle est donnée par  $\sigma = \sigma_0 = \sqrt{A_{\text{éch.}} K_{\text{eff}}}$ .

Finalement, le long de la piste, la paroi ressentira un paysage de potentiel

$$V(q) = -\frac{V_1}{\cosh^2\left(\frac{q-q_1}{\Delta_B}\right)} - \frac{V_2}{\cosh^2\left(\frac{q-q_2}{\Delta_B}\right)} + l_{\text{paroi}}(q) \sigma t .$$

D'après nos mesures de profil présentées en figure 2.22(b), la séparation entre les positions moyennes des deux sites est de  $q_2 - q_1 \approx 140$  nm. On peut également estimer l'évolution de la longueur de la paroi, de  $l_{\text{paroi}}(q_1) \approx 1506$  nm au niveau du site 1, à  $l_{\text{paroi}}(q_2) \approx 1520$  nm au niveau du site 2. Il reste maintenant à prendre en compte l'effet de la température.

**Effet d'une modification locale de la température** Avec la température, on peut s'attendre à une diminution de l'aimantation à saturation  $M_s$  lorsque l'on s'approche de la température de Curie  $T_C$ . Si  $M_s$  change, deux paramètres sont modifiés : la profondeur des pièges  $V_i$  et l'énergie intrinsèque de la paroi  $\sigma_0$ .

En présence d'un échauffement local, possiblement induit par le laser, la profondeur d'un piège dû à la présence d'un défaut va changer linéairement avec l'aimantation à saturation  $M_s(T)$ , soit  $V_i(T) = V_{i,0} [M_s(T)/M_s(0)]$ . En revanche, le coût énergétique linéique de la paroi va varier quadratiquement avec  $M_s$  dans un échantillon ultra-mince [20], comme  $\sigma_0(T) = \sigma_0(0) [M_s(T)/M_s(0)]^2$ .

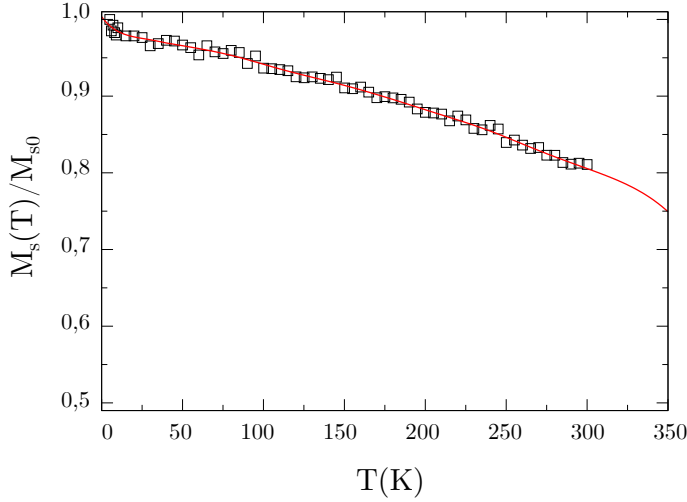


FIGURE 2.25 : loi de Curie pour la couche de **Ta|CoFeB(1 nm)|MgO**. L'aimantation à saturation  $M_s$  a été mesurée par SQUID pour des températures allant de 4 K à 300 K. Les données ont été ajustées et extrapolées (en rouge) jusque 350 K afin de prendre en compte la diminution de  $M_s$  avec la température dans notre modèle.

Si l'on se trouve près de la température de Curie  $T_C$ , c'est-à-dire dans un régime de températures où  $M_s$  varie vite avec  $T$ , le laser va donc imprimer par échauffement un puits de potentiel. Ce puits de potentiel reflète la forme gaussienne du faisceau, centré sur l'endroit où il est focalisé dans la piste. On peut en première approche modéliser le profil de température  $T$  dans la piste par

$$T(q) = T_0 \left( 1 + a(\mathcal{P}_L) \exp \left[ -\frac{2(q - q_L)^2}{w_L^2} \right] \right)$$

où  $w_L \approx 330$  nm désigne le waist mesuré du laser et  $a$  est une constante phénoménologique traduisant le lien entre puissance laser  $\mathcal{P}_L$  et échauffement de la piste magnétique. Ceci permet de prendre en compte l'effet local du chauffage potentiellement induit par laser.

Si le puits de potentiel créé par laser devient suffisamment profond, on peut s'attendre à ce que la paroi finisse par être piégée au point de focalisation, comme dans notre modèle phénoménologique décrit en figure 2.22(d).

**Mesure des paramètres magnétiques - Loi de Curie pour la piste de Ta|CoFeB|MgO** Le paramètre clé du modèle est l'évolution de l'aimantation à saturation en fonction de la température  $M_s(T)$ . Afin de vérifier notre hypothèse, celle-ci a été mesurée par SQUID pour des températures allant de 4 à 300 K. Les données expérimentales, présentées en figure 2.25 ont pu être extrapolées par une fonction spline pour couvrir une région de température allant jusque 350 K avec une précision raisonnable. On peut en particulier observer qu'on se rapproche de la température de Curie du matériau à température ambiante, ce qui peut expliquer les effets importants du chauffage induit par le laser.

En plus de la mesure de  $M_s$ , les autres paramètres dont nous avons eu besoin pour décrire la couche magnétique ont été tirés de la littérature, ou d'études précédentes sur des échantillons similaires. La largeur de la paroi a été estimée à partir de la constante d'échange  $A_{\text{éch.}} = 20$  pJ/m [20] et de la mesure du champ d'anisotropie  $H_{K_{\text{eff}}} = 107$  mT [151]. Ces valeurs permettent d'estimer une largeur de paroi de  $\Delta_B = \sqrt{A_{\text{éch.}}/K_{\text{eff}}} \approx 20$  nm.



**Résultats du modèle et comparaison aux données** À partir du calcul du paysage de potentiel, en fonction de l'échauffement local de la piste, il est possible de remonter aux taux de transition entre les deux sites de piégeage. Ce calcul a été réalisé en appliquant la théorie des taux de transition de Kramer, à partir du modèle stochastique et unidimensionnel pour la dynamique de la paroi le long de la piste. Il est détaillé dans la référence [149]. Les paramètres intervenant dans la dynamique de la paroi, comme l'amortissement  $\alpha$ , ont été tirés de la référence [151]. De manière simplifiée, on peut interpréter les taux de transitions observés comme étant décrits par une loi d'Arrhenius  $\gamma_{i \rightarrow j} \propto \exp(-\Delta E_{i \rightarrow j}/k_B T)$  traduisant le franchissement de la barrière de potentiel  $\Delta E_{i \rightarrow j}$  séparant le site  $i$  du site  $j$ .

Le modèle contient finalement trois paramètres libres, manquant pour déterminer complètement le paysage de potentiel ressenti par la paroi. Ceux-ci sont la profondeur intrinsèque des deux pièges sans température  $V_{i,0}$ , définis par les champs de dépiégeage  $H_{p,i}$ , ainsi que le lien  $a(\mathcal{P}_L)$  entre l'éclairement du laser et le chauffage de la couche magnétique.

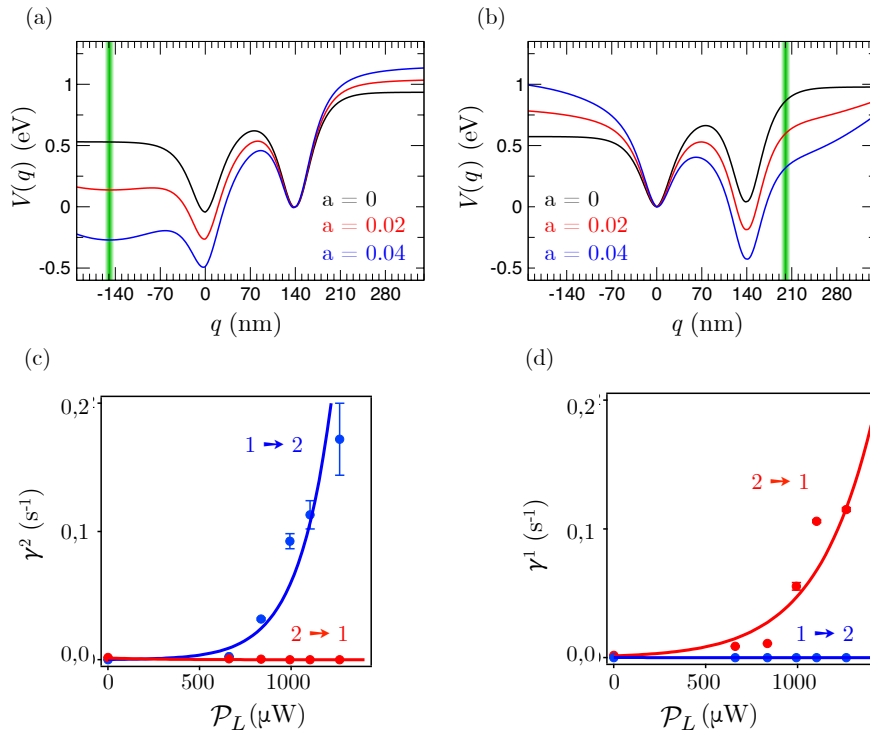


FIGURE 2.26 : **Paysage de potentiels et taux de transitions calculés.** (a) et (b) correspondent aux différentes énergies de paroi en fonction de la position  $q$  du « centre de masse » de la paroi dans la piste, pour différentes valeurs de  $a$  (c'est-à-dire pour des profils de température gaussiens de plus en plus prononcés). Les courbes ont été décalées verticalement pour bien faire apparaître l'évolution induite par le laser. En (a) le laser (dont la position est symbolisée par le trait vert) est focalisé près du site 1 et en (b) près du site 2, de façon à reproduire au mieux les conditions de l'expérience. (c) et (d) correspondent à l'ajustement simultané de toutes les données de la figure 2.24 avec les taux calculés pour une relation  $a(\mathcal{P}_L)$ , à partir des paysages de potentiel. Finalement on trouve  $a/\mathcal{P}_L \approx 20 W^{-1}$ .

Les profondeurs intrinsèques  $V_{1,0}$  et  $V_{2,0}$ , qui ne dépendent pas de la température, ont été déduites des mesures de taux de transition à puissance laser nulle  $\mathcal{P}_L = 0$ . Nous avons ainsi estimé les champs de dépiégeage associés aux deux sites,  $\mu_0 H_{p,1} \approx 1,1 \text{ mT}$  et  $\mu_0 H_{p,2} \approx 1,8 \text{ mT}$ . Ces estimations sont notamment en bon accord avec les champs de dépiégeage mesurés dans ce type d'échantillons [150].

Finalement, il a été possible de calculer la forme du paysage de potentiel, uniquement en fonction du paramètre  $a$ . De tels calculs sont présentés en figure 2.26(a) et (b) pour une position du faisceau laser correspondant à celle de nos expériences. Partant de ces paysages de potentiel, les taux de transitions ont été calculés en appliquant la théorie des taux de transition de Kramer. Nous avons ajusté le lien entre le paramètre  $a$  et la puissance laser pour coller simultanément au mieux à l'ensemble des données expérimentales. Cet ajustement dont le résultat est présenté en figure 2.26 est satisfaisant pour une relation linéaire entre  $a$  et  $\mathcal{P}_L$  à savoir  $a/\mathcal{P}_L \approx 20 \text{ W}^{-1}$ , ce qui donne correspond à un échauffement de  $6 \text{ K/mW}$  de la couche magnétique au centre de la tache du laser.

**Validation du modèle par thermométrie NV** Afin de valider le résultat du modèle, nous avons cherché à effectuer une mesure *in situ* de la température de l'échantillon. Un des aspects remarquables du centre NV est en effet qu'il n'est pas seulement sensible au champ magnétique, mais que la position des raies de résonance magnétique est également affectée par la température, ce qui permet de l'utiliser comme thermomètre de taille nanométrique [152–154]. À haute température, la modification des spectres est essentiellement due à une dilatation du cristal de diamant, laquelle conduit à une variation mesurable du paramètre d'éclatement des raies en champ nul  $D$ . Pour une gamme de température entre  $280 \text{ K}$  et  $330 \text{ K}$  cette variation peut être considérée comme linéaire et vaut [154]

$$\frac{dD}{dT} = -74,2(7) \text{ kHz/K}$$

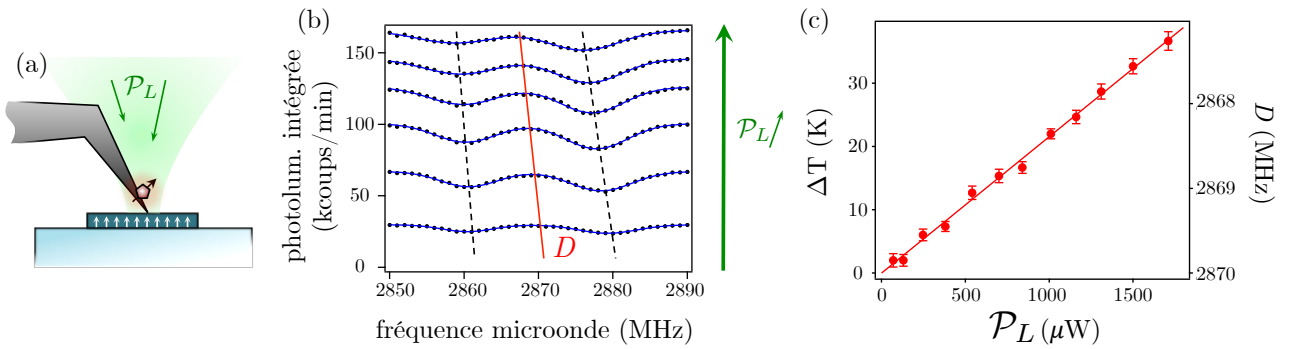


FIGURE 2.27 : **Mesure de température avec le centre NV.** (a) Schéma de l'expérience. La pointe est en contact de l'échantillon, et on enregistre des spectres d'ODMR en changeant la puissance laser focalisée sur le centre NV. Les lignes droites sont des guides pour l'œil. (b) Différents spectres de résonance magnétique enregistrés pour des puissances du laser croissantes. (c) Position de  $D$  en fonction de la puissance du laser. Comme  $D$  varie linéairement avec  $T$ , on remonte directement à la variation de température en fonction de la puissance du laser.

Nous avons donc enregistré plusieurs spectres de résonance magnétique, avec la pointe d'AFM en contact avec la couche magnétique et en faisant varier la puissance du laser. Ces mesures sont présentées en figure 2.27(b). La photoluminescence moyenne étant une fonction croissante de la puissance laser, les courbes sont naturellement rangées de haut en bas par puissance laser décroissante. On peut observer à l'œil le déplacement de la fréquence centrale  $D$ , qui traduit une élévation de la température. Tous les spectres de résonance magnétique ont été ajustés par une somme de deux gaussiennes, centrées en  $f_+$  et  $f_-$ . De cet ajustement on tire précisément le paramètre  $D = (f_+ + f_-)/2$ , ce qui permet de tracer son évolution en fonction de la puissance du laser, en figure 2.27(c). On observe que la température croît linéairement avec la puissance laser. Quantitativement, on trouve une augmentation de

$$\frac{\Delta T}{P_L} = 21,6(4) \text{ K/mW}$$

Cette valeur est à comparer aux  $\sim 6 \text{ K/mW}$  obtenus par le modèle théorique, au centre du faisceau. On a avant tout mis en évidence un échauffement induit par le laser à proximité de la piste magnétique. De plus, les deux valeurs pour l'échauffement au centre du faisceau laser, mesurée par thermométrie avec le centre NV, et prédite par la modélisation des sauts de Barkhausen thermiquement activés, sont du même ordre de grandeur. Cet accord permet de valider quantitativement l'hypothèse d'un échauffement local induit par le laser, modifiant le paysage de potentiel de la piste magnétique.

Il existe malgré tout une différence nette entre les deux taux d'échauffement. On peut faire de nombreuses hypothèses concernant l'écart entre l'évolution de la température, mesurée au niveau du centre NV, et celle prédite par le modèle dans la piste magnétique. Tout d'abord expérimentalement, toute la puissance laser focalisée sur le centre NV n'atteint pas nécessairement la couche magnétique. Bien que les profils gaussiens du laser, au niveau du centre NV et au niveau de la couche magnétique, doivent être les mêmes (la longueur de Rayleigh est de l'ordre de  $z_R \approx 650 \text{ nm}$  ce qui reste très grand devant les  $100 \text{ nm}$  qui séparent le NV de la surface), la pointe écrante certainement une partie de l'éclairement du laser, et ainsi diminue l'échauffement.

D'autre part, dans le modèle, la distribution de température est considérée comme uniforme en travers la piste magnétique, ce qui a pour effet de surestimer l'effet du chauffage. On s'attend donc à ce que la température dérivée du modèle soit plus faible que la température réelle au point de focalisation.

Enfin, il est possible que des effets de conduction thermique conduisent à ce que la température au niveau de la piste soit plus faible qu'au niveau du centre NV.

En conclusion, le modèle phénoménologique développé par Joo-Von Kim semble très bien capturer l'essentiel de la physique de ces sauts de parois activés par laser. La concordance entre ce modèle et nos résultats expérimentaux est en effet très bonne, et l'hypothèse d'une activation thermique des sauts de Barkhausen se trouve ainsi largement confortée.

#### 2.4.4 Exploitation pour cartographier les défauts

Pour terminer cette étude, nous allons montrer que la compréhension des sauts de Barkhausen induits par laser permet finalement d'utiliser ce qui serait *a priori* un défaut de notre expérience à notre avantage, pour

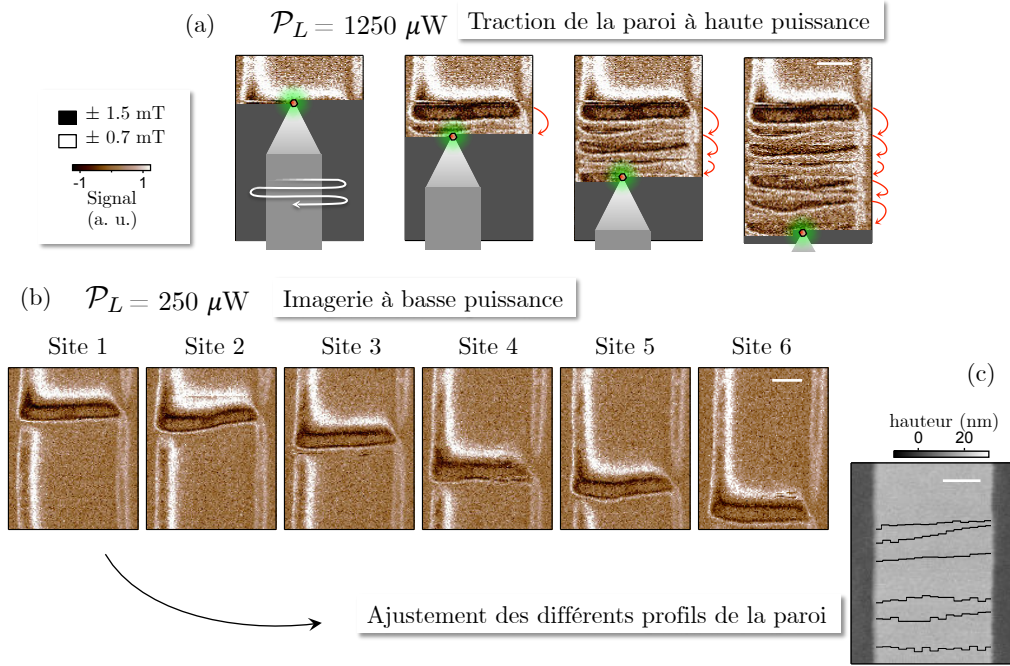


FIGURE 2.28 : **Cartographier les sites de piégeage dans la piste.** (a) En se plaçant à haute puissance laser ( $\mathcal{P}_L \sim 1 \text{ mW}$ ) on tire la paroi au fur et à mesure que l'on déplace le centre NV (où le laser est focalisé). On peut ainsi amener la paroi de manière quasi déterministe à un endroit précis en la faisant sauter de site en site (flèches rouges) (b) Si on stoppe l'image de (a) à un endroit donné dans la piste et qu'on réduit la puissance du laser ( $\mathcal{P}_L = 250 \mu\text{W}$ ) on peut imaginer la paroi dans le site où elle aura relaxé. On peut de la sorte établir une cartographie des sites de piégeage stables de la piste, correspondant aux défauts intrinsèques. Cette cartographie obtenue après ajustement des profils de la paroi est superposée à la topographie de la piste (nettoyée à l'AFM par rapport à la même piste présentée en figure 2.21) en figure (c). Sur toutes les images la barre blanche correspond à 500 nm.

cartographier les défauts de la piste magnétique.

Le principe, schématisé en figure 2.28, est d'utiliser le laser à très forte puissance ( $\mathcal{P}_L \sim 1 \text{ mW}$ ) pour imprimer un puits de potentiel dans la piste. Si le potentiel est suffisamment profond, la paroi sera attirée au point de focalisation du laser. On peut de la sorte déplacer la paroi de site de piégeage stable en site de piégeage stable. Une fois la paroi positionnée dans une région à étudier, on réduit la puissance du laser ( $\mathcal{P}_L \sim 250 \mu\text{W}$ ) et on peut imaginer sa position. Un ajustement permet de remonter au profil spatial de la paroi, ce qui nous renseigne sur la position des défauts dans la piste magnétique. En particulier, on observe que les sites stables (à la résolution temporelle de notre instrument) où la paroi se piège sont en moyenne séparés d'une distance de  $\sim 300 \text{ nm}$ , ce qui peut être considéré comme la distance caractéristique séparant les défauts.

Si l'origine de ces défauts (joint de grain, variations d'épaisseurs ou d'interface [155]...) reste spéculative, on peut tout de même noter qu'ils ont une très faible densité, en comparaison à d'autres matériaux ultra-minces à aimantation perpendiculaire, comme Pt|Co ou Pd|Co. Cette très faible densité de défauts, qui justifie le modèle 1D introduit précédemment, permet d'obtenir de très faibles champs de dépiégeage dans les couches de

Ta|CoFeB|MgO [150]. Le développement de couches sans défauts est notamment un pas nécessaire à franchir pour parvenir à de nouvelles architectures pour le traitement de l'information magnétique, telles que la *racetrack memory* introduite par S. Parkin et collègues en 2008 [3, 5]. Dans cette optique, la microscopie à balayage de centre NV offre de nouvelles perspectives pour la caractérisation du piégeage à l'échelle nanométrique [149].

## 2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit une nouvelle technique d'imagerie du champ magnétique à l'échelle nanométrique : la microscopie à balayage de centre NV. Cette technique présente le double avantage d'être sensible et quantitative, sans perturber magnétiquement l'échantillon mesuré. En plus de ces caractéristiques, la microscopie à centre NV fonctionne dans des conditions expérimentales très peu exigeantes (notamment à température ambiante et dans l'air). En cela, elle est à rapprocher de la microscopie à force magnétique, et pourrait être de la même façon envisagée pour étudier de manière routinière de nombreux échantillons.

En particulier, le microscope à balayage de centre NV que nous avons développé au laboratoire nous a permis d'imager à l'échelle nanométrique le champ d'une paroi de domaine dans une couche ultra-mince.

Nous avons d'autre part observé des sauts de Barkhausen activés thermiquement de ces mêmes parois de domaine dans une couche ultra-mince de Ta|CoFeB|MgO, et mis en évidence la possibilité d'affecter un échantillon magnétique à trop grande puissance laser. Cependant, la compréhension de ce phénomène nous a permis de l'utiliser à notre avantage pour cartographier les défauts dans une piste magnétique du même matériau.

Ce type d'étude des défauts est un passage obligé si l'on souhaite un jour parvenir à des dispositifs tels que la *racetrack memory* imaginée par Parkin et collègues en 2008. On pourrait en outre souhaiter aller plus loin, et fabriquer de manière artificielle des défauts dans une couche magnétique, pour stabiliser une paroi à une position déterminée par exemple. Une des façons de procéder peut être d'irradier la couche magnétique avec des ions [156]. Ce sujet nous amène directement au chapitre suivant, dans lequel nous allons étudier l'effet de l'irradiation d'une piste magnétique nano-structurée avec des ions hélium.

# Mesure locale de la densité de moments magnétiques pour l'étude d'une nano-structure irradiée

## Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Mesurer la densité de moments magnétiques à des échelles nanométriques . . . .</b>	<b>82</b>
3.1.1	Limitations des techniques conventionnelles . . . . .	82
3.1.2	Mesure de $M_s$ par microscopie NV . . . . .	83
3.1.3	Preuve de principe . . . . .	85
3.1.4	Évaluation des incertitudes . . . . .	88
3.1.5	Résolution spatiale et hauteur de vol . . . . .	92
<b>3.2</b>	<b>Application de la méthode à l'étude d'une nano-structure irradiée par des ions <math>\text{He}^+</math> . . . . .</b>	<b>94</b>
3.2.1	Échantillon d'étude . . . . .	95
3.2.2	Mesure de la densité de moments magnétiques de la piste irradiée localement . . . . .	97
3.2.3	Renversement de la région irradiée . . . . .	98
<b>3.3</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>100</b>

---

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il était possible d'étudier l'impact de défauts d'une couche magnétique ultra-mince sur la position des parois de domaine, en imageant celles-ci à une échelle sub-micrométrique au moyen d'un magnétomètre à centre NV.

Dans l'espoir de disposer de systèmes efficaces pour le stockage et la manipulation de l'information tels que la *racetrack memory* introduite par Parkin *et al.* [5], ou bien des memristors utilisant les parois de domaines [31], il est important de pouvoir non seulement observer l'effet des défauts sur la position que prennent des parois de domaine dans une piste magnétique, mais également de pouvoir contrôler de manière déterministe les positions

favorables pour ces domaines. Une manière d'y parvenir est de façonner dans un matériau des régions où les propriétés magnétiques sont localement modifiées. Ceci peut être réalisé de manière contrôlée en irradiant le matériau avec des ions  $\text{He}^+$  au travers d'un masque, comme introduit par C. Chappert et collègues en 1998 [156]. Nous allons dans ce chapitre nous intéresser aux effets de l'irradiation sur l'aimantation à saturation  $M_s$  d'une piste magnétique nano-structurée.

Nous commencerons par introduire une méthode permettant de mesurer  $M_s$  avec une résolution spatiale sub-micrométrique dans les couches ferromagnétiques ultra-minces, à l'aide du magnétomètre à centre NV (§3.1). Nous montrerons ensuite comment cette méthode peut être utilisée pour étudier les modifications locales de  $M_s$  induites par irradiation aux ions  $\text{He}^+$ . Enfin, nous profiterons de la diminution de champ coercitif induite par l'irradiation pour retourner spécifiquement la zone irradiée, et nous utiliserons le microscope à balayage de NV pour imager les parois ainsi obtenues (§3.2).

### 3.1 Mesurer la densité de moments magnétiques à des échelles nano-métriques

De manière surprenante, il n'existe pas de technique permettant de mesurer la densité de moments magnétiques dans des couches ferromagnétiques ultra-minces après leur structuration à des échelles nanométriques. Nous allons montrer dans cette partie comment une mesure quantitative du champ magnétique à l'échelle nanométrique, telle que celle fournie par le microscope à balayage de centre NV, permet de remédier à ce problème.

#### 3.1.1 Limitations des techniques conventionnelles

La méthode généralement employée pour mesurer l'aimantation à saturation consiste en la mesure du moment magnétique total d'un échantillon — le plus souvent par des mesures de flux au travers d'un SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) ou par VSM (Vibrating Sample Magnetometry) —, puis de diviser cette quantité pour se ramener à une densité volumique de moments magnétiques (ou surfacique dans le cas de couches ultra-minces). Il existe de très nombreuses méthodes pour mesurer le moment total, différant par leur précision, sensibilité au bruit, ou vitesse d'acquisition, et nous ne souhaitons pas en donner une description précise dans ce manuscrit. Pour les instruments les plus précis tels que les SQUID, la limitation de la sensibilité est ultimement imposée par la présence de moments magnétiques parasites contaminant l'échantillon, par exemple dans des poussières microscopiques contenant du fer. Expérimentalement les limites de sensibilité sont de l'ordre de  $10^{-10} \text{ Am}^2$ , soit  $\sim 10^{13} \mu_B$ , où  $\mu_B \approx 9,274 \cdot 10^{-24} \text{ Am}^2$  désigne le magnéton de Bohr [157–159].

De fait, cette méthode de mesure de  $M_s$  devient intrinsèquement problématique pour des échantillons ultra-minces où le moment magnétique est extrêmement dilué. Prenons l'exemple d'une couche typique d'épaisseur  $t \sim 1 \text{ nm}$  et d'aimantation à saturation  $M_s = 10^6 \text{ A/m}$ . La densité surfacique de moments magnétiques  $I_s$  est donc de l'ordre de  $I_s = M_s t \approx 100 \mu_B/\text{nm}^2$ . Si on souhaite mesurer un moment seulement 10 fois supérieur à la limite de bruit de  $10^{13} \mu_B$ , il est nécessaire d'intégrer le signal provenant d'une surface de l'ordre de  $\sim 1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ . Cette limitation n'est pas un frein fondamental pour la caractérisation de couches magnétiques ultra-minces,

toutefois, une telle résolution ne permet pas de mesurer  $M_s$  sur un échantillon ultra-mince nano-structuré.

Une idée pour obtenir une meilleure résolution serait d'utiliser un SQUID de dimension micrométrique, voire même nanométrique [100, 160]. Si de telles méthodes peuvent donner des résultats probants, puisqu'en mesurant une petite région de l'échantillon on s'affranchit de toute contamination, le problème est alors de déterminer avec précision le lien entre l'aimantation du matériau et le flux qui traverse la boucle du SQUID, ce qui est en général très complexe et sous-tend une très bonne connaissance et modélisation des conditions de l'expérience.

Une autre approche intéressante utilisée pour mesurer  $M_s$  dans une étude récente de Vernier et collègues consiste à mesurer la répulsion entre deux parois de domaines [161]. Cette répulsion est en principe gouvernée par le champ dipolaire des parois de domaine, et fait donc intervenir le paramètre  $M_s$ . De cette façon il est possible de remonter à la valeur de  $M_s$  avec une résolution spatiale de l'ordre de la dizaine de microns carrés. Cependant une telle méthode semble compliquée à mettre en oeuvre dans un échantillon quelconque, car elle présuppose de disposer de parois de domaines dans l'échantillon, suffisamment droites, et d'être certain que la répulsion des parois est bien d'origine dipolaire uniquement. Enfin, si le gain en résolution est conséquent, on demeure tout de même restreint à une mesure optique ce qui laisse des échantillons de taille nanométrique hors d'atteinte.

### 3.1.2 Mesure de $M_s$ par microscopie NV

Nous allons ici montrer qu'une mesure quantitative du champ de fuite généré par une structure magnétique peut permettre très simplement, sans appliquer de champ et sans calibration préalable, de remonter à l'aimantation à saturation avec une résolution spatiale sub-micrométrique.

Soit une aimantation donnée  $\mathbf{M}(\mathbf{r}) = M_s \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r})$ . Dès que la divergence de l'aimantation  $\text{div}(\mathbf{M})$  est non-nulle, il apparaît dans le matériau ce que l'on peut assimiler à des accumulations de charges magnétiques de signes opposés, qui jouent un rôle similaire à des charges électriques en électrostatique. De la présence de ces charges magnétiques fictives, il résulte généralement l'apparition hors matériau d'un champ magnétique de fuite. On comprend assez naturellement que si  $M_s$  change, la densité de charges changera en proportion, et qu'il en ira donc de même pour le champ de fuite. Ce raisonnement intuitif qui s'appuie sur une analogie entre la magnétostatique et l'électrostatique (approche dite « Coulombienne ») est justifié de manière plus rigoureuse en annexe A.

Le point important est que la dépendance linéaire du champ magnétique en l'aimantation permet de remonter à la valeur de  $M_s$  par une mesure locale et quantitative de champ de fuite. En effet, pourvu qu'on connaisse la distribution de l'aimantation  $\mathbf{m}(\mathbf{r})$ , on pourra prédire la forme du champ de fuite, à un facteur de normalisation près :  $M_s$ . Si l'idée est assez générale, et pourrait en principe être appliquée à tout matériau, la connaissance *a priori* de la forme de l'aimantation  $\mathbf{m}(\mathbf{r})$  du matériau n'est pas nécessairement évidente. Toutefois, dans le cas des couches ultra-minces à aimantation perpendiculaire qui nous intéressent, cette distribution est justement connue et, qui plus est, très simple, puisque  $\mathbf{m}$  ne varie pas dans l'épaisseur.



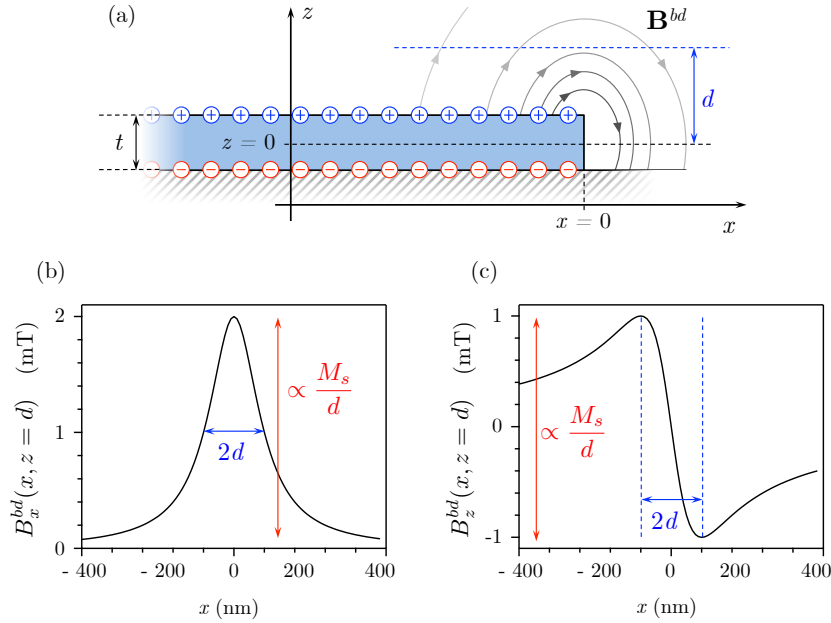


FIGURE 3.1 : **Calcul champ de bord de piste.** (a) Schéma de la couche magnétique dont on souhaite calculer le champ de bord. La couche étant aimantée perpendiculairement à son plan, on a une accumulation de charges magnétiques sur les deux surfaces (supérieure et inférieure) de la couche, comme pour un condensateur plan en électronique. (b) Composante planaire et (c) perpendiculaire du champ magnétique produit par une telle structure, calculée à une distance  $d = 100$  nm d'une couche magnétique typique à partir de l'équation A.5, avec  $M_s = 1$  MA/m et  $t = 1$  nm. La hauteur du pic de champ est proportionnelle à  $I_s = M_s t$  et sa largeur à  $d$ .

À l'intérieur d'un domaine, tous les moments magnétiques pointent dans la même direction, par exemple vers le haut. On a donc uniquement des charges magnétiques de surface, sur le plan supérieur de la couche et de signe opposé sur le plan inférieur (cf. figure 3.1). C'est le parfait équivalent d'un condensateur plan en électrostatique et, comme dans un condensateur, aucun champ n'apparaît en dehors de la couche magnétique, sauf aux extrémités de celle-ci. **Notre expérience consiste à mesurer quantitativement le champ de fuite  $\mathbf{B}^{bd}$  produit par le bord d'une couche magnétique perpendiculairement aimantée.** Étant en mesure de calculer le champ magnétique attendu, nous pourrons alors déduire la valeur de  $M_s$ , en ajustant les données expérimentales par une prédiction théorique du champ.

Le calcul analytique du champ de fuite  $\mathbf{B}^{bd}$  au bord d'une couche ferromagnétique à aimantation perpendiculaire est détaillé en annexe A. Dans le cas d'un bord d'une couche mince d'épaisseur  $t$  suivant la verticale  $\hat{z}$ , infinie suivant  $\hat{y}$  et comprise entre  $-\infty$  et 0 suivant  $\hat{x}$ , ce champ s'exprime comme

$$\begin{cases} B_x^{bd}(x, z) = \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \left( \frac{z}{x^2 + z^2} \right) + O\left(\left(\frac{t}{z}\right)^3\right) \\ B_y^{bd}(x, z) = 0 \\ B_z^{bd}(x, z) = -\frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \left( \frac{x}{x^2 + z^2} \right) + O\left(\left(\frac{t}{z}\right)^3\right) \end{cases} \quad (3.1)$$

La composante  $B_y^{bd}$  est nulle par symétrie. Les composantes  $B_x^{bd}$  et  $B_z^{bd}$  du champ sont tracées en figure 3.1 pour une couche typique d'épaisseur  $t = 1$  nm avec  $M_s = 10^6$  A/m. Comme indiqué sur la figure, on peut remarquer que le champ ne dépend pas seulement de  $M_s$  mais également de la distance  $z$  à l'échantillon. Cette distance, qui correspond à la hauteur de vol  $z = d$  du centre NV, intervient notamment dans l'étalement spatial des profils de champ.

L'ajustement d'une mesure quantitative du champ de fuite au-dessus d'un bord de couche magnétique à l'aide de l'équation (3.1) permettra donc non seulement d'en déduire l'aimantation à saturation  $M_s$ , mais aussi de connaître la hauteur de vol  $d$ .

**Densité surfacique de moment magnétique  $I_s$**  On pourra remarquer que dans l'équation (3.1) le facteur de normalisation du champ magnétique n'est pas donné par  $M_s$ , mais par le produit  $I_s = M_s t$  de la densité volumique d'aimantation par l'épaisseur  $t$  de la couche magnétique. Ce que l'on va mesurer correspond donc à la densité surfacique de moment magnétique  $I_s$ , ce qui est d'une certaine façon assez logique étant donné que l'on considère des couches ultra-minces et donc à deux dimensions seulement. Cette quantité est d'ailleurs la grandeur à laquelle on a effectivement accès dans les couches ultra-minces avec la plupart des techniques conventionnelles comme le SQUID. Comme avec ces autres techniques, on se ramènera à  $M_s$  en divisant par l'épaisseur nominale  $t$  de la couche magnétique. Pour plus d'exactitude nous avons cependant choisi d'exprimer tous nos résultats en fonction de  $I_s$ , l'épaisseur  $t$  n'étant pas toujours bien définie, par exemple si la couche de substrat est polarisée sur quelques couches atomiques comme dans les multicouches de Pd|Co [162], ou simplement du fait de la rugosité des interfaces.

### 3.1.3 Preuve de principe

**Échantillon** Dans cette partie, l'échantillon dont nous souhaitons mesurer la densité de moments magnétiques est une couche ultra-mince de Ta(5)|Co<sub>20</sub>Fe<sub>60</sub>B<sub>20</sub>(1)|MgO(2)|Ta(5), déposée par pulvérisation sur un substrat de SiO<sub>2</sub> amorphe.

Nous désirons mesurer le champ magnétique au-dessus d'un bord de cette couche magnétique. Cependant, nous savons que notre AFM est sujet à des dérives, ainsi qu'à des non-linéarités des platines piézo-électriques, qui se traduisent par des erreurs sur les distances mesurées dans les images. Une échelle de distance latérale correcte est cependant cruciale car, comme nous venons de le voir, l'étalement spatial du champ de fuite est directement relié à la distance de vol  $d$ . Si l'on se trompe sur l'estimation de  $d$ , on commettra également une erreur sur la mesure de  $I_s$ . De façon à avoir une référence de distance absolue, nous avons donc travaillé avec des pistes magnétiques, c'est-à-dire avec deux bords de couche magnétique, séparés d'une distance  $l$ , comme schématisé en figure 3.2(a). Ces pistes ont été obtenues à partir d'une couche uniforme, par gravure ionique au travers d'un masque défini par lithographie électronique. Après la fabrication, nous avons réalisé des mesures de topographie au moyen d'un AFM calibré, afin d'avoir une référence précise des dimensions des pistes. Nous avons ainsi mesuré la profondeur de la gravure  $\delta d$  avec une précision de  $\pm 5$  nm, et leur largeur  $l$  avec une précision de  $\pm 20$  nm.

Ayant deux bords, en  $x = 0$  et  $x = l$ , on s'attend finalement à mesurer la réponse du centre NV à un champ de fuite du type

$$\mathbf{B}(x) = -\mathbf{B}^{bd}(x) + \mathbf{B}^{bd}(x - l). \quad (3.2)$$

On rappelle que la réponse du centre NV à un champ  $\mathbf{B}$  est un déplacement Zeeman qui s'exprime en valeur absolue comme  $\Delta f_{NV} \approx \sqrt{E^2 \pm ((\gamma_{NV}/2\pi) \mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{NV})^2}$ , où  $\mathbf{u}_{NV}$  est défini par les angles  $(\theta, \phi)$  qui sont mesurés avec une précision de  $\pm 2^\circ$  (cf. chapitre 2). Comme nous ne mesurons que la valeur du déplacement Zeeman et non son signe, nous n'avons accès qu'à la norme du champ  $|\mathbf{B}(x)|$ . Le signe du champ, déterminé par l'orientation de l'aimantation dans la piste, n'intervient donc pas dans notre expérience.

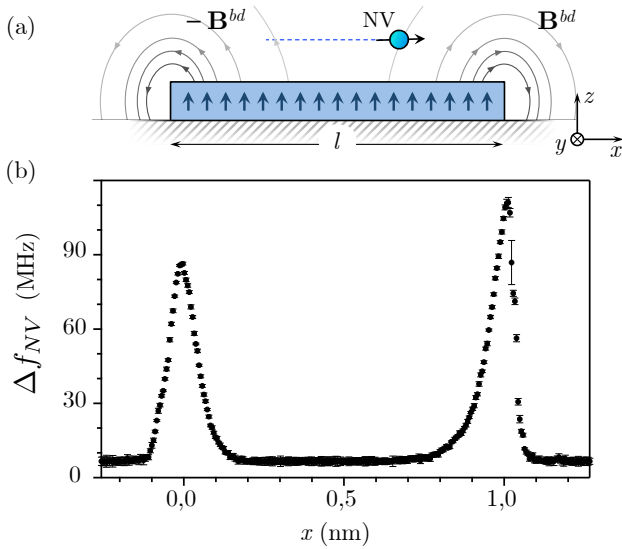


FIGURE 3.2 : Mesure du champ magnétique au-dessus d'une piste magnétique uniformément aimantée. (a) Schéma en coupe de l'expérience. Le centre NV est balayé au-dessus de la piste magnétique dont les deux bordures produisent un champ  $\pm \mathbf{B}^{bd}$ , lequel induit un déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$  des niveaux d'énergie du spin du centre NV. (b) Enregistrement du déplacement Zeeman du centre NV au-dessus de la piste magnétique.

**Effet de la topographie des pistes** Le résultat d'une mesure de champ magnétique au-dessus d'une piste est présenté en figure 3.2(b). De manière *a priori* surprenante, on constate que le champ mesuré n'a pas la même magnitude au-dessus des deux extrémités de la piste. Ceci n'est en réalité pas dû à des variations de  $M_s$  à l'intérieur de la piste, mais au fait que l'on ait pas pris en compte la topographie de l'échantillon dans l'équation (3.2). En effet, le centre NV attaché à la pointe d'AFM va suivre le profil de hauteur de la piste. À cela se rajoute le fait que les deux maxima du champ de fuite mesuré sont décalés latéralement par rapport aux bords de la piste. Il en résulte que sur l'un des maxima du champ, le centre NV est plus proche de la couche magnétique qu'au niveau du second maximum du champ mesuré. Ceci est schématisé en figure 3.3 pour plus de clarté.

Notons qu'il y a deux raisons au décalage entre le maximum du champ mesuré et la position du bord de la piste magnétique. La première tient au fait que le centre NV est toujours légèrement décalé latéralement par rapport à l'extrémité de la pointe AFM [figure 3.3(a)]. La seconde provient du fait que l'on mesure une projection du champ magnétique sur l'axe du centre NV. En d'autres termes, on va mesurer la valeur absolue

d'une somme pondérée des deux composantes du champ tracées en figure 3.1. Le maximum du champ projeté  $B_{NV}$  n'a donc aucune raison d'être exactement centré sur la couche, sauf dans le cas particulier d'un centre NV orienté parallèlement à celle-ci.

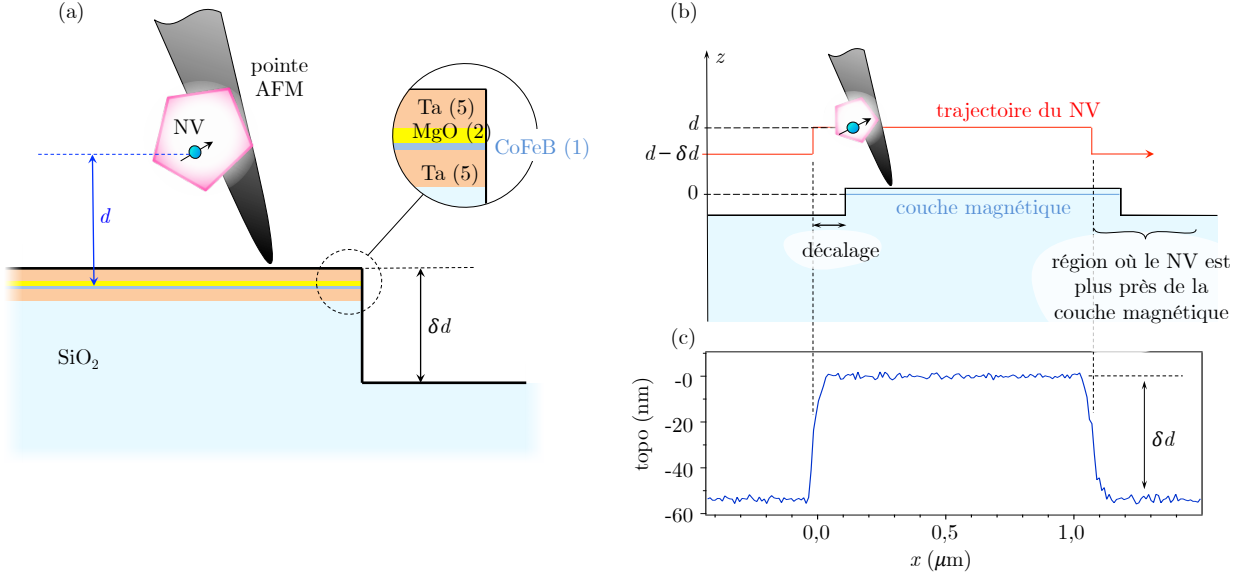


FIGURE 3.3 : **Mesure sur un bord de piste - Géométrie.** (a) Schéma de l'expérience au niveau du bord de la piste magnétique. Le centre NV est attaché près de l'extrémité de la pointe d'AFM, et balayé au-dessus du bord de la piste en suivant la topographie. Il se trouve ainsi à une distance  $d$  de la couche magnétique, lorsque la pointe est sur le dessus de la piste. La topographie, résultant de l'étape de lithographie, consiste en une marche de hauteur  $\delta d$ . Cette marche a pour effet de rapprocher le centre NV de la couche magnétique au-delà du bord de la piste, à une distance  $d - \delta d$ . (b) Schéma de l'expérience de mesure du champ au-dessus d'une piste. Du fait d'un léger décalage entre la position latérale du centre NV et l'extrémité de la pointe d'AFM, la trajectoire du centre NV n'est pas exactement centrée sur la position réelle de la piste. Il en résulte que le centre NV est plus près de la couche magnétique au niveau d'un des bords qu'il ne l'est au niveau de l'autre bord. Ce décalage contribue au déséquilibre entre les deux maxima de champ mesurés en figure 3.2(b). (c) Exemple de fonction topo utilisée pour prendre en compte la topographie.

**Ajustement des données** Étant donné que la topographie et la cartographie de champ magnétique sont enregistrées simultanément, il est possible de prendre en compte la topographie mesurée par AFM dans les calculs de champ magnétique. On ajuste alors les données expérimentales en fonction des deux paramètres  $M_s$  et  $d$  en partant d'un profil de champ théorique donné par

$$\mathbf{B}(x) = -\mathbf{B}^{bd}(x, z = d + topo(x)) + \mathbf{B}^{bd}(x - l, z = d + topo(x)) \quad (3.3)$$

où la fonction "topo" correspond au profil mesuré à l'AFM, et est essentiellement une fonction porte comme décrite en figure 3.3(c), valant en moyenne 0 sur le dessus de la couche magnétique et  $-\delta d$  ailleurs, où  $\delta d$  est la

profondeur de la gravure ionique, mesurée de façon indépendante. Il est à noter que cette fonction ne correspond pas exactement à la mesure brute obtenue par AFM. Une soustraction des fluctuations lentes est effectuée pour s'affranchir des dérives du positionnement vertical de l'échantillon, ainsi que de la pente de l'échantillon. Ces fluctuations lentes sont des artefacts de mesure et ne correspondent pas à un changement de position relatif du centre NV, par rapport à la couche magnétique.

Au champ  $\mathbf{B}$  calculé, on applique la réponse du centre NV en recherchant les valeurs propres du hamiltonien de l'effet Zeeman introduit au chapitre précédent,

$$\mathcal{H} = hDS_Z^2 + hE(S_X^2 - S_Y^2) + g\mu_B\mathbf{B} \cdot \mathbf{S} \quad (3.4)$$

où les coordonnées  $(X,Y,Z)$  sont données dans la base du défaut ( $Z \equiv \mathbf{u}_{NV}$ ). Quatre paramètres associés au centre NV entrent dans ce Hamiltonien. Ces paramètres, à savoir  $D$ ,  $E$ , et les angles  $\theta$  et  $\phi$  (qui interviennent dans le produit  $\mathbf{B} \cdot \mathbf{S}$ ), sont mesurés lors de la fonctionnalisation du magnétomètre, avec des précisions respectives de  $\pm 0,2$  MHz pour  $E$  et  $D$ , et de  $\pm 2^\circ$  pour les angles (cf. chapitre 2). Les valeurs propres du Hamiltonien sont obtenues en le diagonalisant numériquement, ce qui donne *in fine* sans approximation la position en fréquence  $f_{\pm}$  des résonances magnétiques, que l'on peut directement comparer aux données expérimentales. Notons que nous choisissons généralement de tracer la position relative d'une transition  $|f_{\pm} - D|$ , ce qui est proche du déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$  et se compare quasi-directement au champ en divisant par  $\gamma_{NV}/2\pi = 28$  MHz/mT.

En résumé, on peut calculer le résultat attendu pour une mesure expérimentale par microscopie à balayage de centre NV, sur une coupe au-dessus d'une piste uniformément aimantée, et ce en fonction de n'importe quel jeu de paramètres  $(M_s, d)$ . Nous pouvons donc ajuster les données expérimentales en fonction de ces deux paramètres. Le résultat d'un tel ajustement est présenté en figure 3.4 pour deux centres NV différents, sur la même piste magnétique. On obtient de manière parfaitement reproductible la valeur de  $I_s = 98 \pm 3 \mu_B/\text{nm}^2$  et celle de  $d$  pour chaque expérience. Dans la partie qui suit nous allons décrire la façon dont nous avons estimé la précision de cette mesure, qui correspond à quelques pourcents de la valeur mesurée.

### 3.1.4 Évaluation des incertitudes

Les sources d'erreur dans notre mesure peuvent être divisées en deux catégories : l'erreur intrinsèquement liée à la mesure et à l'ajustement ; et les incertitudes sur les paramètres de l'expérience, incluant les caractéristiques géométriques de la piste magnétique et celles du centre NV utilisé pour la mesure.

Tout d'abord, la mesure du déplacement Zeeman du spin du centre NV est nécessairement entachée de bruit. Lorsque l'on cherche à ajuster les données expérimentales, on commet donc une double erreur, d'une part à cause du bruit sur les données, et d'autre part due à l'imperfection de l'ajustement. Pour évaluer la justesse de l'estimation de la grandeur  $X$  ( $X$  étant soit  $M_s$ , soit  $d$ ), erreur que nous dénoterons par la suite  $\Delta_{X/\text{ajust.}}$ , nous avons enregistré entre 10 et 20 fois la même coupe de champ au-dessus d'une piste magnétique (telle que celle présentée en figure 3.2(b)). L'ajustement de l'ensemble de ces coupes permet d'obtenir une valeur pour

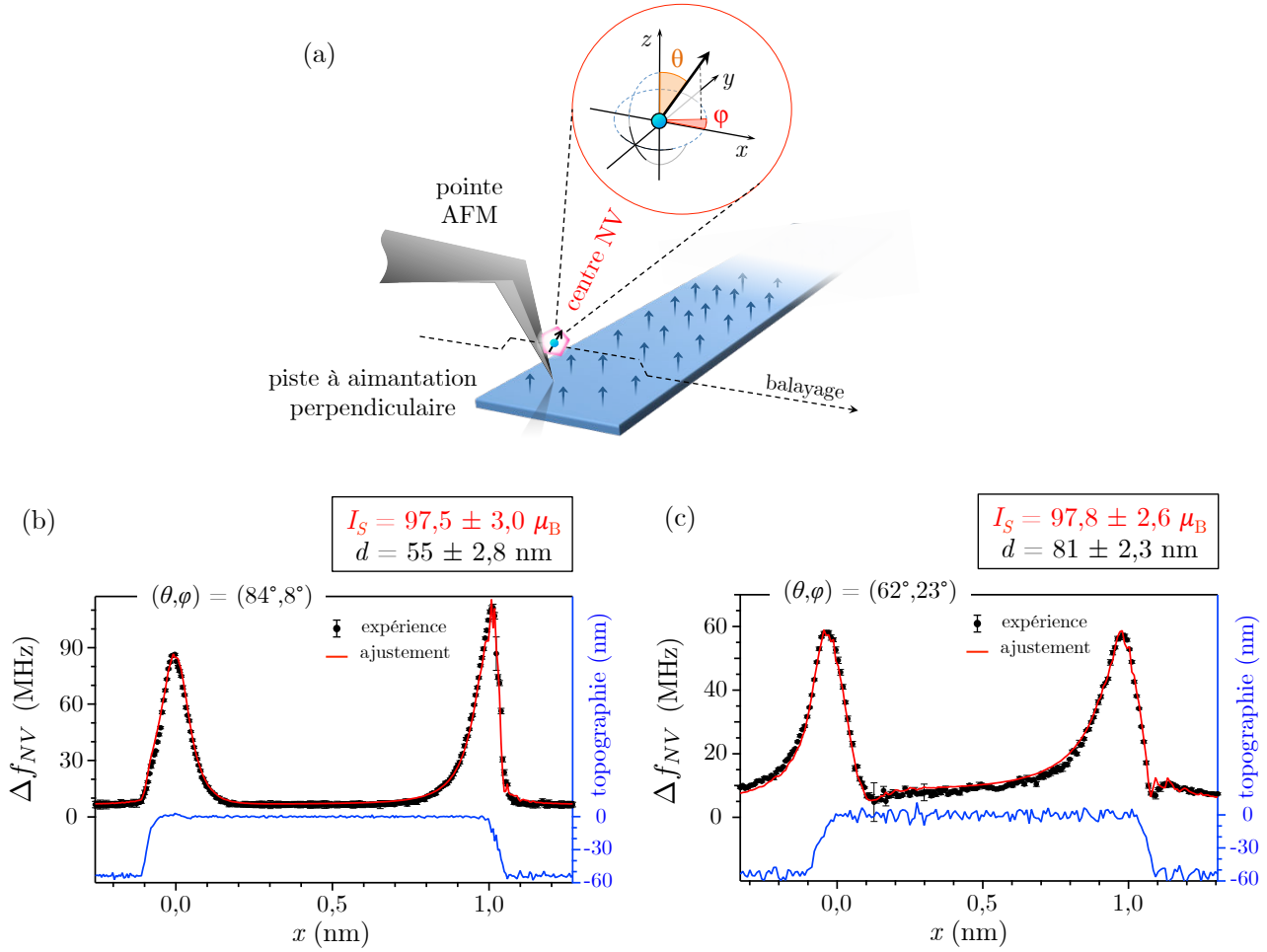


FIGURE 3.4 : **Ajustement des coupes de champ au travers d'une piste magnétique.** (a) Schéma de l'expérience. Le centre NV, d'orientation  $(\theta, \phi)$  est balayé au-dessus de la piste magnétique et on enregistre le déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$  d'une des raies d'ODMR. Cette mesure, qui essentiellement correspond au champ des bords de la piste projeté sur l'axe du centre NV, est ajustée en prenant en compte la topographie, par un champ  $\mathbf{B}(x)$  tel que celui de l'équation (3.3) auquel on applique la réponse du centre NV en diagonalisant le Hamiltonien du spin dans l'état fondamental. On extrait ainsi les deux inconnues de la mesure : la densité de moments magnétiques  $I_s$  et la hauteur de vol  $d$ . (b) et (c) Ajustements obtenus en mesurant la même piste magnétique avec deux centres NV différents. On obtient le même résultat pour  $I_s$ , à l'incertitude près,  $I_s = 98 \pm 3 \mu_B/\text{nm}^2$ .

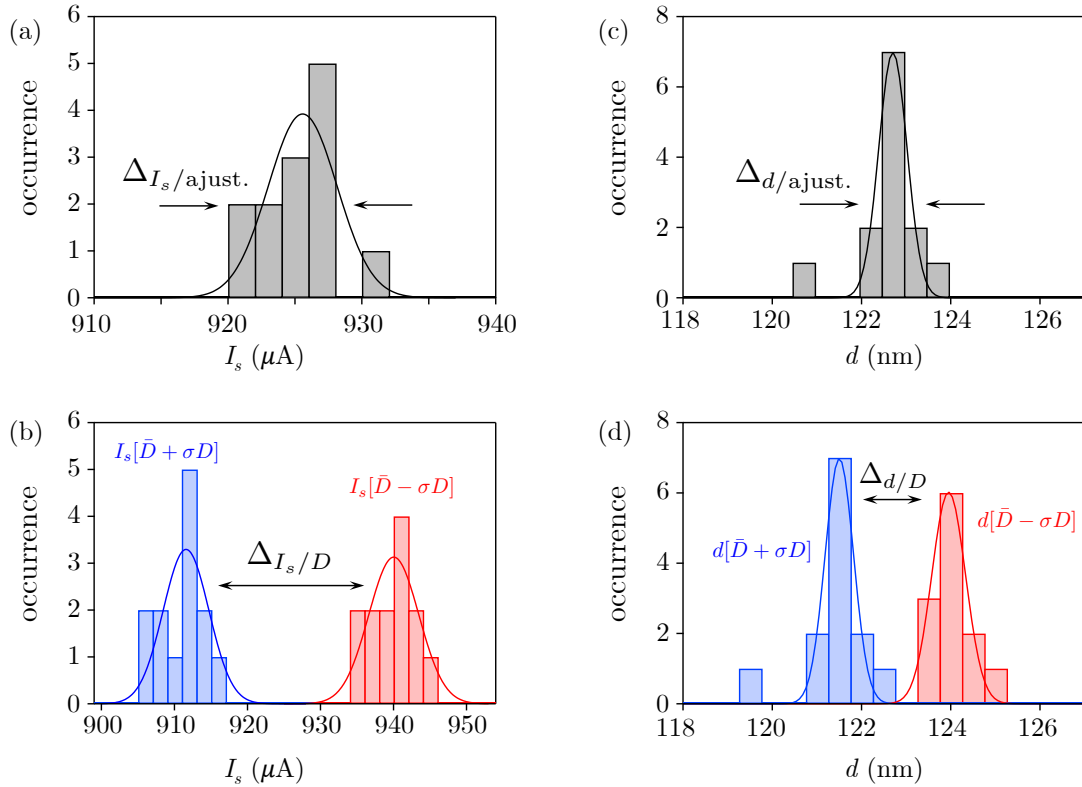


FIGURE 3.5 : **Évaluation des incertitudes de la méthode.** (a) et (c) Histogrammes représentant la dispersion des résultats de l'ajustement des données de 13 coupes mesurées au-dessus d'une piste magnétique, au même endroit. L'écart-type de ces données donne l'erreur sur  $I_s$ ,  $\Delta I_s/\text{ajust.}$ , en (a) et sur  $d$ ,  $\Delta d/\text{ajust.}$ , en (c). (b) et (d) Estimation de l'influence de l'incertitude d'un paramètre  $p_i$  de l'ajustement sur le résultat final — ici  $D$ . L'ensemble des données sont réajustées en remplaçant la valeur nominale  $\bar{D}$  par  $\bar{D} + \sigma D$  puis par  $\bar{D} - \sigma D$ . On obtient de la sorte deux nouvelles valeurs moyennes  $X[\bar{D} + \sigma D]$  et  $X[\bar{D} - \sigma D]$ , d'où on déduit  $\Delta_{X/D} = |X[\bar{D} + \sigma D] - X[\bar{D} - \sigma D]|/2$  qui est une estimation de l'influence de l'incertitude sur  $D$  sur l'erreur finale. On effectue ce type d'ajustement indépendamment pour chacun des paramètres  $p_i$  pour connaître l'incertitude totale, comme donné dans l'exemple du tableau 3.1.

$X$ , avec une certaine dispersion. La valeur moyenne de  $X$  obtenue à partir de la série de mesures constitue le résultat de notre mesure. De même nous avons estimé  $\Delta_{X/\text{ajust.}}$  comme correspondant à l'écart-type de la série de données, comme schématisé en figure 3.5(a) et (c). Dans l'exemple de la mesure présentée en figure 3.4, l'incertitude liée à l'ajustement des données est de l'ordre de 2% pour  $I_s$  et 4% pour  $d$ , ce qui est récapitulé dans le tableau 3.1. Cette erreur, essentiellement liée à l'imprécision de la mesure du déplacement Zeeman, est ainsi l'une des principales causes d'incertitude de la mesure.

La seconde source d'erreur sur  $X$  dans notre mesure vient de la propagation des incertitudes sur les autres paramètres utilisés dans notre calcul pour l'ajustement des données. Ces paramètres sont ceux liés au calcul de la réponse du centre NV, à savoir son orientation, caractérisée par les angles  $(\theta, \phi)$ , la contrainte  $E$  et le déplacement en champ nul  $D$ , mais également les paramètres géométriques de notre expérience, c'est-à-dire

la largeur de la piste magnétique  $l$ , et sa hauteur  $\delta d$ . L'erreur sur  $\theta$  et  $\phi$  vient de l'ajustement de la mesure de l'orientation présentée au chapitre 2, et résulte en une incertitude de  $2^\circ$ . Les paramètres  $E$  et  $D$ , mesurés en ajustant un spectre d'ODMR en champ nul sont évalués avec une précision de l'ordre de 0,2 MHz. Enfin, les paramètres  $l$  et  $\delta d$  mesurés par un AFM calibré sont connus respectivement à une précision de 20 nm et 5 nm [cf. table 3.1]. Afin d'évaluer l'influence de chaque paramètre  $p_i \in \{D, E, \theta, \phi, l, \delta d\}$  sur l'erreur finale, nous avons ajusté de nouveau  $X$  à partir de toutes les coupes de déplacement Zeeman, mais en changeant  $p_i$  autour de sa valeur nominale  $\bar{p}_i$  de plus ou moins l'écart-type  $\sigma p_i$  mesuré de façon indépendante. On obtient ainsi deux valeurs pour  $X$ , que nous appellerons  $X[\bar{p}_i - \sigma p_i]$  et  $X[\bar{p}_i + \sigma p_i]$ . Pour peu que l'écart type sur la grandeur  $p_i$  soit suffisamment faible pour que l'évolution de  $X$  avec cette variation soit linéaire, une bonne estimation de l'incertitude causée par celle sur  $p_i$  est donnée par  $\Delta_{X/p_i} \approx |X[\bar{p}_i + \sigma p_i] - X[\bar{p}_i - \sigma p_i]|/2$ . Les figures 3.5(b) et (d) schématisent la procédure pour estimer la propagation de l'erreur  $\sigma_D$  sur  $D$  sur la mesure finale  $\Delta_{X/D}$ . Parmi tous les paramètres, on constate que ce sont les erreurs sur  $\delta d$  et sur  $l$  qui ont l'influence la plus grande. C'est pourquoi il est nécessaire de bien déterminer les dimensions des pistes pour obtenir une mesure précise.

paramètre $p_i$	valeur nominale $\bar{p}_i$	incertitude $\sigma_{p_i}$	erreur relative sur $d : \epsilon_{d/p_i} (\%)$	erreur relative sur $I_s : \epsilon_{I_s/p_i} (\%)$
$D$	2866,6 MHz	0,2 MHz	0,283	0,515
$E$	6,6 MHz	0,2 MHz	0,138	0,156
$\theta$	$84^\circ$	$2^\circ$	0,393	0,008
$\phi$	$8^\circ$	$2^\circ$	0,008	0,445
largeur $l$	1000 nm	20 nm	1,311	1,661
hauteur $\delta d$	54 nm	5 nm	3,206	1,574
erreur relative due à l'ajustement $\epsilon_{X/\text{ajust.}}$			3,738	1,887
incertitude totale $\epsilon_X = \sqrt{\epsilon_{X/\text{ajust.}}^2 + \sum_i \epsilon_{X/p_i}^2}$			5,121	3,047

TABLE 3.1: **Récapitulatif de toutes les sources d'incertitudes pour l'expérience de magnétométrie présentée en figure 3.4(b).** L'erreur sur la mesure finale résulte de plusieurs facteurs. L'erreur induite par l'ajustement des données expérimentales, elles mêmes entachées d'erreur, est donnée par  $\epsilon_{X/\text{ajust.}}$ . D'autre part, les autres paramètres de l'expérience entrant dans l'ajustement induisent une erreur supplémentaire. Pour cela nous avons mesuré l'impact de chacun des paramètres sur le résultat de notre mesure, en les faisant varier dans leur gamme d'incertitude. Celle-ci a été mesurée de manière indépendante. Par des mesures d'ODMR en champ nul, on obtient  $D$  et  $E$  avec une précision de 0,2 MHz.  $\theta$  et  $\phi$  sont connus à  $2^\circ$  près par la mesure de l'orientation présentée au chapitre 2. Enfin, les dimensions de la piste  $l$  et  $\delta d$  sont mesurées par un AFM calibré avec des précisions respectives de 20 nm et 5 nm.



*In fine*, toutes les sources d'erreur étant indépendantes *a priori*, et on peut additionner ce qui s'apparente aux variances :  $\Delta_{X/\dots}^2$ . On obtient donc une erreur totale

$$\Delta_X = \sqrt{\Delta_{X/\text{ajust.}}^2 + \sum_{p_i} \Delta_{X/p_i}^2} \quad ,$$

que l'on peut exprimer en termes d'incertitude relative  $\epsilon_X = \Delta_X/X$ . Un exemple d'une telle estimation des incertitudes correspondant à la couche magnétique étudiée dans la coupe en figure 3.4(b) est résumée dans le tableau 3.1. On parvient finalement à une incertitude de quelques pourcents, pour laquelle les facteurs limitants sont la précision de l'ajustement et l'incertitude sur les paramètres géométriques de la piste magnétique, à savoir sa hauteur  $\delta d$  et sa largeur  $l$ .

### 3.1.5 Résolution spatiale et hauteur de vol

Tandis que notre but était de mesurer la densité de moments magnétiques dans une couche ultra-mince, on a également accès à la mesure de la distance de vol  $d$  qui sépare notre capteur, le centre NV, de la couche magnétique. La précision sur  $d$  est de l'ordre de  $\sim 1\%$ , c'est-à-dire quelques nanomètres tout au plus. Cette méthode peut donc être utilisée pour mesurer de façon très précise  $d$ , connaissance cruciale pour de nombreuses expériences.

D'autre part, comme nous l'avions mentionné au chapitre précédent, la distance  $d$  nous donne aussi une information sur la résolution spatiale de notre instrument. En effet, le champ d'un dipôle magnétique s'étale linéairement avec  $d$ , ce qui est illustré en figure 3.6. Si l'on souhaite, dans une image de champ magnétique, séparer les contributions de deux parties distinctes de la structure d'aimantation d'un matériau, il faudra que ces parties soient séparées au moins par la hauteur de vol, en utilisant un équivalent du critère de Rayleigh pour la résolution des instruments d'optique. La limite de résolution en aimantation de notre instrument est donc bien de l'ordre de  $d$ , c'est-à-dire de l'ordre de 50 – 100 nm dans notre expérience. Cette valeur n'est cependant pas intrinsèque à la technique de microscopie NV.

Dans notre expérience,  $d$  est limitée par l'accrochage des nano-diamants sur la pointe AFM, décrit au chapitre 2. En effet, le diamant que nous attachons ne se positionne pas à l'extrémité de la pointe comme nous le souhaiterions, et ce même lorsque l'on accroche des diamants de taille inférieure à la dizaine de nanomètres. Deux pistes peuvent être suivies pour diminuer la distance  $d$ . La première est d'essayer d'**améliorer notre procédure d'accrochage**, de façon à ce que celle-ci soit plus déterministe. On peut pour cela songer à utiliser d'autres pointes AFM, ou essayer de jouer sur le polymère que nous utilisons pour « coller » les diamants. La seconde option est de changer de stratégie, et d'utiliser des **pointes AFM directement taillées dans du diamant** contenant un centre NV [147]. Il est en effet possible d'implanter des centres NV dans du diamant, de façon contrôlée et à proximité de la surface. De telles pointes en diamant ont été notamment développées par le groupe de P. Maletinsky à l'université de Bâle. Nous montrerons dans le chapitre d'ouverture des résultats préliminaires de mesure de distance que nous avons obtenu avec de telles pointes, où le centre NV est implanté à  $\sim 10$  nm de la surface.

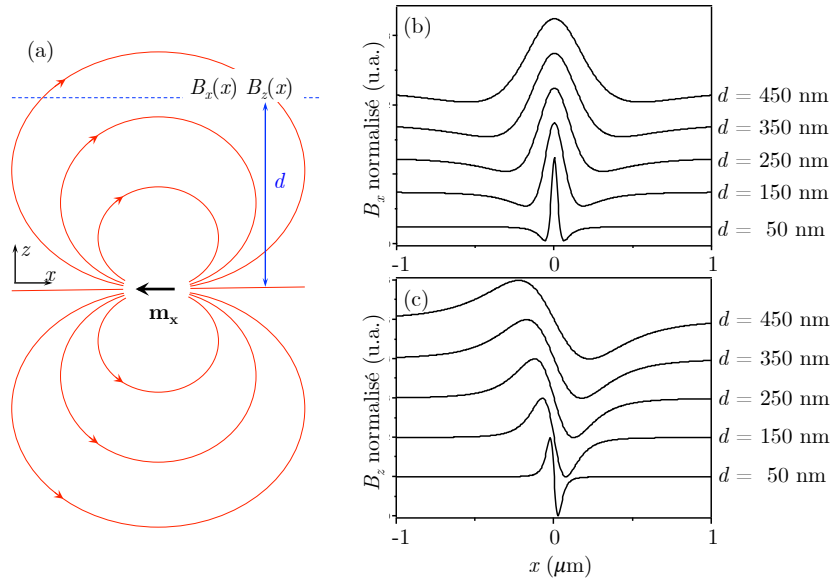
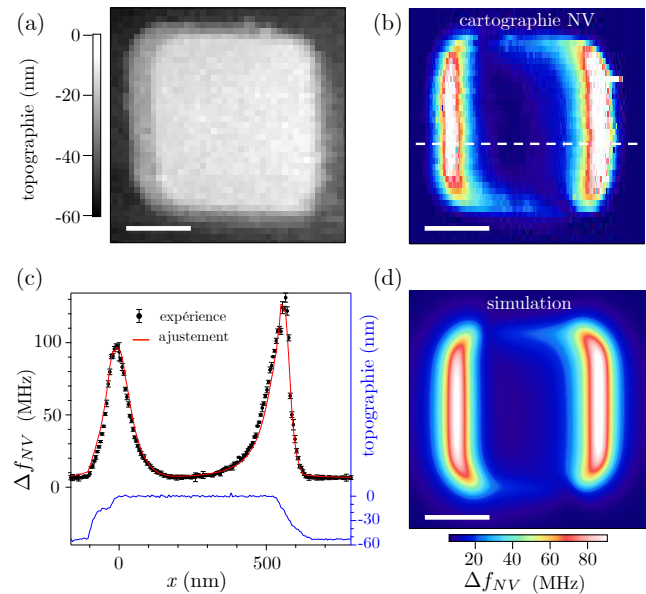


FIGURE 3.6 : **Résolution spatiale : "critère de Rayleigh" pour un dipôle magnétique.** (a) Schéma d'une mesure de champ dans l'exemple d'un dipôle ponctuel  $\mathbf{m}_x = -m\mathbf{u}_x$ , à une distance  $z = d$  fixe du dipôle. Les lignes rouges représentent les lignes de champ magnétique. (b) et (c) Composantes  $B_x(x)$  et  $B_z(x)$  du champ magnétique calculées à des distances  $d$  respectives de 50, 150, 250, 350 et 450 nm du dipôle. Les courbes ont été normalisées à 1 pour plus de lisibilité (l'amplitude du champ décroissant en  $1/d^3$ , seule la courbe calculée à  $d = 50$  nm serait visible sans cette normalisation), et décalées verticalement proportionnellement à  $d$ . On visualise bien que l'étalement spatial du champ dipolaire est proportionnel à  $d$ . Si on souhaite distinguer le champ de deux dipôles magnétiques séparés de  $\Delta r$ , on doit donc mesurer le champ à une distance  $d \lesssim \Delta r$ .  $d$  correspond donc à la résolution spatiale de l'instrument.

FIGURE 3.7 : **Détermination de la densité de moment magnétique dans une nano-structure carrée.** (a) Topographie d'un plot carré gravé dans une couche de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO mesurée par AFM. (b) Cartographie du déplacement Zeeman du centre NV  $\Delta f_{NV}$  au-dessus de la même structure (c) Coupe du déplacement Zeeman correspondant à la ligne pointillée blanche de la figure (b). L'ajustement des données donne  $I_s = 98 \pm 3 \mu_B/\text{nm}^2$  et  $d = 54 \pm 3$  nm. (d) Calcul du déplacement Zeeman du centre NV attendu en figure (b) à partir des paramètres extraits de la coupe (c). La simulation ne prend pas en compte la topographie pour des questions de simplicité, ce qui explique les différences entre les parties de gauche des images expérimentale et simulée. (barres d'échelle : 200 nm)



Malgré les limites de notre procédure d'accrochage, on atteint en routine une résolution spatiale meilleure que 100 nm. On peut en conséquence imaginer mesurer  $M_s$  sur des régions très petites, inférieures au micron carré. C'est ce que nous montrons par exemple en figure 3.7, pour des plots carrés de 500 nm de côté gravés dans la même couche de Ta|CoFeB|MgO que celle étudiée en figure 3.4. En ajustant les données par une procédure similaire à celle présentée précédemment, on obtient comme attendu le même résultat que pour une piste, à l'erreur près, en l'occurrence  $I_s = 98 \pm 3 \mu_B/\text{nm}^2$ .

Notre résolution, limitée par la hauteur de vol  $d$ , est donc de l'ordre de  $100 \times 100 \text{ nm}^2$ , ce qui constitue un gain de quatre ordres de grandeur en résolution par rapport à la mesure de l'étude de Vernier et collègues [161], et huit ordres de grandeur par rapport aux techniques de magnétométrie conventionnelles. Ce gain en résolution permet d'étudier des échantillons nano-structurés. Il est notamment possible de mesurer les modifications locales de l'aimantation à saturation  $M_s$  induites par irradiation avec des ions  $\text{He}^+$ .

### 3.2 Application de la méthode à l'étude d'une nano-structure irradiée par des ions $\text{He}^+$

L'irradiation d'une piste magnétique permet de créer des régions où il sera plus facile de retourner des domaines magnétiques que dans le reste du matériau. En effet, les deux conséquences principales de l'irradiation sont de diminuer le moment magnétique total  $M_s$ , et de réduire le champ coercitif. De la sorte, il devient possible de contrôler facilement la position des parois de domaines qui, en principe, viennent se positionner au niveau de la transition entre régions irradiée et non-irradiée. Ceci a été montré dans des multicouches de Pt|Co irradiés par des ions  $\text{He}^+$  dans l'étude originale de Chappert et collègues [156] par des observations de domaines magnétiques en microscopie Kerr, que nous avons reproduit en figure 3.8(a) et (b).

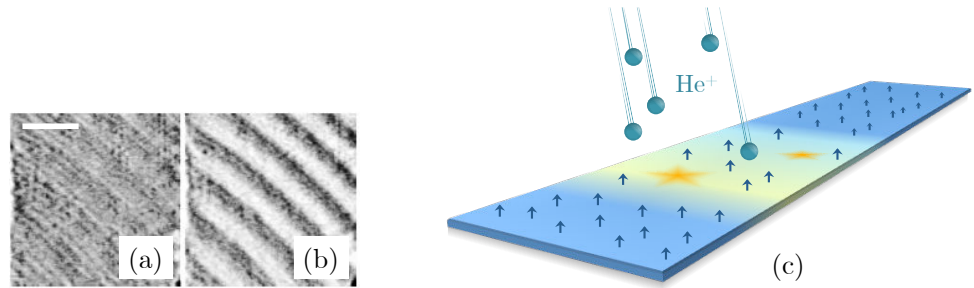


FIGURE 3.8 : **Irradiation avec des ions  $\text{He}^+$** . (a) et (b) Images de microscopie magnéto-optique en champ proche, sur un échantillon de  $(\text{Pt}(1,4)|\text{Co}(0,3))_6$ , adaptées de l'article de Chappert et collègues [156] (*barre d'échelle : 3  $\mu\text{m}$* ). La multicouche a été irradiée par des ions  $\text{He}^+$ , au travers d'un masque de résine. L'irradiation a deux effets : une réduction de  $M_s$ , et une diminution du champ coercitif. En conséquence, l'application d'un champ faible entre les images (a) et (b) permet de retourner spécifiquement les bandes irradiées, qui apparaissent en blanc sur l'image (b). (c) Schéma de l'expérience que nous envisageons, pour étudier les parois dans une couche irradiée, avec la résolution de la microscopie NV. Une piste de Ta|CoFeB(1)|MgO est irradiée localement au travers d'un masque de résine.

Si de telles mesures par microscopie Kerr sont tout à fait convaincantes, la résolution spatiale de la technique ne permet pas d'étudier les effets de l'irradiation à l'échelle nanométrique. C'est cependant à ces échelles que sont développées les architectures de stockage et de traitement de l'information. C'est pourquoi nous avons cherché à étudier les effets de l'irradiation par des ions  $\text{He}^+$  sur une piste ultra-mince de Ta|CoFeB|MgO, telle que celle présentée dans le chapitre précédent.

Dans ce type de couche, des mesures conjointes de magnétométrie sur films macroscopiques et de résonance ferromagnétique, présentées dans une étude de Devolder *et al.* [163], ont permis de vérifier les effets attendus pour une irradiation par des ions  $\text{He}^+$  accélérés à 15 keV. Ces effets sont une légère augmentation de l'anisotropie magnétocristalline  $K$  due à la cristallisation de la couche de CoFeB à basse fluence ( $< 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ ). À haute fluence, le mélange causé par les déplacements atomiques entre les différentes couches contribue à augmenter l'amortissement  $\alpha$ , et à diminuer le moment magnétique global  $M_s$ , ce qui a pour effet d'augmenter l'anisotropie effective. Si l'irradiation est trop forte ( $> 10^{16}$  ions/ $\text{cm}^2$ ), la couche devient paramagnétique à température ambiante. Ces effets, similaires à ceux observés dans les multicouches de Pt|Co [156] devraient donc permettre d'obtenir le même type de résultats concernant le positionnement des parois de domaines dans une piste magnétique. Nous chercherons dans cette section à étudier les effets de l'irradiation sur le positionnement des parois de domaines magnétiques, en profitant de la résolution spatiale nanométrique de la microscopie NV.

### 3.2.1 Échantillon d'étude

L'échantillon que nous avons étudié nous a été fourni par le groupe NOMADE de l'IEF (Université d'Orsay), et a été réalisé par K. Garcia. Il consiste en une multicouche de Ta(5)|Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>(1)|MgO(2)|Ta(5) (les nombres entre parenthèses dénotent les épaisseurs nominales en nanomètres) déposée par pulvérisation sur substrat de SiO<sub>2</sub> amorphe, recuite puis nano-structurée par lithographie électronique et gravure ionique. Elle a été ensuite irradiée au travers d'ouvertures de 1  $\mu\text{m}$ , définies par lithographie électronique dans un masque de polyméthyl-metacrylate (PMMA) de 400 nm d'épaisseur. L'irradiation a été réalisée par des ions  $\text{He}^+$  accélérés à 15,5 keV, à une fluence de  $16 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ .

Après avoir saturé l'échantillon, nous avons mesuré simultanément la topographie et la cartographie du champ au-dessus de la piste. Le résultat de ces mesures est présenté en figure 3.9(a) et (b), pour un centre NV orienté suivant la direction ( $\theta = 100^\circ, \phi = 48^\circ$ ).

Comme attendu, on observe que l'irradiation n'a pas sensiblement modifié la topographie de l'échantillon, ce qui est l'un des objectifs recherchés par l'utilisation de cette technique [156]. L'irradiation permet de structurer les échantillons tout en conservant leur planéité. On observe d'autre part que, bien que le matériau ait été saturé par l'application d'un champ magnétique, il y demeure un champ mesurable en travers de la piste magnétique [figure 3.9(b)]. Ce champ n'est pas celui de parois de domaines, mais est issu du contraste de densité de moments magnétiques entre la zone irradiée et la zone protégée de l'irradiation par la résine. Nous commencerons donc par mesurer ces densités de moments magnétiques, afin d'étudier l'impact de l'irradiation sur notre nano-structure. Pour cela, nous allons utiliser la méthode introduite dans la partie précédente (§3.1).

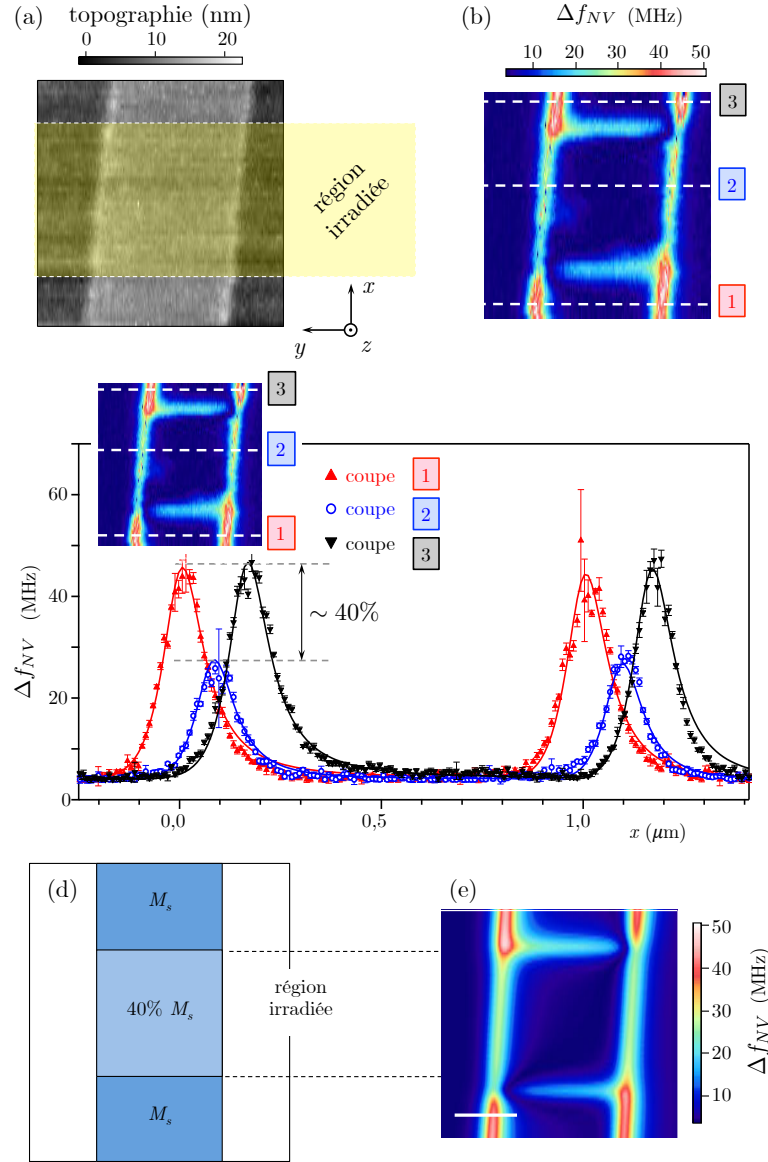


FIGURE 3.9 : **Étude d'une piste de Ta|CoFeB(1)|MgO irradiée.** (a) Topographie de la piste irradiée mesurée à l'AFM. La région irradiée est indiquée en jaune. On constate que l'irradiation n'a pas modifié la topographie de l'échantillon. (b) Cartographie du déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$  de la raie supérieure d'un centre NV au-dessus de la même piste. On observe du champ à la fois aux bords de la piste magnétique, mais aussi en travers de celle-ci. Ceci n'est pas dû à la présence de parois de domaines, mais à un contraste de la densité de moments magnétiques, causée par l'irradiation (c) Coupes du déplacement Zeeman correspondant aux trois lignes pointillées blanches de l'image en insert, et leur ajustement (en lignes pleines). L'ajustement permet de mesurer  $I_s = 72,9 \pm 2,0 \mu_B/\text{nm}^2$  dans la région protégée de l'irradiation par un masque de PMMA, et  $I_s = 42,5 \pm 2,0 \mu_B/\text{nm}^2$  dans la région irradiée. La chute de 40% s'observe d'ailleurs directement sur le champ du bord, et ne nécessite pas de connaissance absolue de  $I_s$ . (e) Simulation de la cartographie (b) avec les paramètres mesurés pour  $I_s$  et pour  $d$  extraits à partir des coupes, en utilisant pour le calcul un profil d'aimantation tel que décrit en (d). (barres d'échelle : 500 nm)

### 3.2.2 Mesure de la densité de moments magnétiques de la piste irradiée localement

En reprenant la cartographie de la figure 3.9(b), on peut réaliser des coupes dans les différentes régions de l'image, correspondant à la zone irradiée ou non. De telles coupes, présentées en figure 3.9(c) permettent de se rendre compte immédiatement, en comparant la valeur des maxima de champ au-dessus des bords de la piste, que l'aimantation à saturation  $M_s$  a diminué d'environ 40% dans la région irradiée. Cette valeur est en accord convenable avec les mesures réalisées sur des films étendus [163]. En effet, au-dessus de la zone irradiée ou au-dessus de la zone protégée de l'irradiation, toutes les conditions de l'expérience sont les mêmes. Le changement de l'amplitude du champ mesuré ne peut donc s'expliquer que par une chute de  $M_s$ . Au passage, il est intéressant de souligner qu'une telle mesure de chute de  $M_s$  pourrait aussi bien être obtenue avec un microscope à force magnétique (MFM), car elle ne nécessite pas une connaissance absolue du champ. Cependant, l'intérêt supplémentaire de notre mesure, par rapport à ce qui serait réalisable en MFM, est que nous disposons d'une mesure quantitative du champ magnétique<sup>1</sup>, d'où on peut remonter à la valeur exacte de  $I_s$ . En ajustant les données des coupes avec les paramètres  $I_s$  et  $d$ , on trouve ainsi  $I_s = 42,5 \pm 2,0 \mu_B/\text{nm}^2$  dans la région irradiée et  $I_s = 72,9 \pm 2,0 \mu_B/\text{nm}^2$  ailleurs.

La première remarque au vu de ces mesures est que le moment total a diminué par rapport à la valeur attendue, et ce même dans la zone en principe protégée de l'irradiation par la couche de PMMA. On verra en effet dans le chapitre suivant que, dans une couche de même stœchiométrie ( $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ ) qui n'a pas subi de traitement par irradiation, la densité de moment magnétique est de  $I_s \approx 98 \mu_B/\text{nm}^2$ . On s'attendrait donc, dans la partie protégée par le PMMA, à mesurer une valeur pour  $I_s$  de l'ordre de  $\sim 100 \mu_B/\text{nm}^2$ , or  $I_s$  a diminué de près de 30% par rapport à cette valeur. La conclusion est donc que 400 nm de PMMA ne suffisent pas à protéger totalement la couche magnétique. Cette conclusion est en accord avec des simulations réalisées par T. Devolder (IEF, Orsay) avec le logiciel SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) [164]. Ces simulations montrent qu'une petite fraction des ions  $\text{He}^+$  parvient jusqu'à la couche magnétique. De plus, ces ions déjà ralentis par le PMMA peuvent plus facilement déposer leur énergie dans la couche magnétique.

Disposant des densités de moments magnétiques exactes dans la piste magnétique irradiée, on peut simuler la cartographie complète que l'on a mesurée par microscopie à balayage de centre NV. Le modèle utilisé pour l'aimantation est une piste magnétique uniformément aimantée perpendiculairement à la couche, où  $I_s$  diminue de 40% dans une zone carrée de  $1 \mu\text{m}$  de côté. Le résultat est présenté en figure 3.9(e). On constate tout d'abord visuellement un bon accord entre simulation et expérience, ce qui laisse à penser qu'à la résolution de notre microscope, c'est-à-dire  $\sim 100 \text{nm}$ , l'irradiation a été relativement homogène. Cela n'exclut cependant pas la présence de petits défauts. Notamment, si on regarde attentivement l'image de champ 3.9(b) on peut observer une petite variation de champ dans le coin en bas à gauche de la zone irradiée, ce qui n'apparaît pas dans la simulation 3.9(e).

---

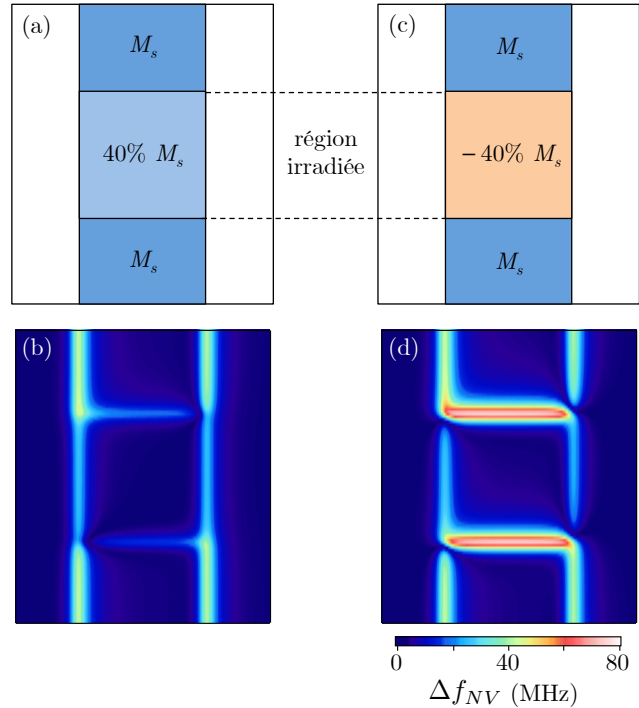
1. Notons qu'il est possible en principe de réaliser des mesures quantitatives de champ avec un MFM, mais ceci suppose une modélisation précise de la pointe du MFM comme par exemple dans l'étude de Rawlings et Durkan [107], ce qui est généralement extrêmement complexe.

Maintenant que l'on a caractérisé l'aimantation à saturation dans la couche après irradiation, on va pouvoir s'intéresser à ce qui se produit lorsque l'on essaie de retourner sélectivement l'aimantation des parties irradiées de la piste.

### 3.2.3 Renversement de la région irradiée

Nous nous attendons à ce qu'à l'aide d'un faible champ magnétique statique, on puisse retourner uniquement la région irradiée. Celle-ci présente en effet un champ coercitif plus faible que dans le reste du matériau. Afin d'étudier la possibilité de retourner sélectivement la région irradiée, nous avons calculé les cartographies de champ magnétique, attendues pour notre microscope au-dessus de la piste. Ces cartographies ont été calculées dans deux situations. Dans le premier cas [figure 3.10(a)], la zone irradiée est demeurée dans la même orientation que le reste de la piste, soit parce que l'on a retourné toute la piste, soit parce que l'on n'a rien retourné. Dans le second cas [3.10(c)], la région irradiée a été retournée sélectivement. Les cartographies de champ obtenues sont très différentes dans chaque cas. Dans le cas où la piste présente un domaine retourné [figure 3.10(d)], le champ au niveau des parois de domaines est beaucoup plus intense que dans le cas où on a un simple contraste d'aimantation entre la région irradiée et le reste de la piste [figure 3.10(b)]. D'autre part, les régions où la projection du champ sur l'axe du centre NV s'annule ne sont pas situées au même endroit dans les deux cartographies. Ces calculs montrent qu'il est possible de faire la distinction entre une piste contenant un domaine et un simple contraste d'aimantation, directement à partir de l'image du champ magnétique de fuite.

FIGURE 3.10 : **Comparaison entre le cas d'une zone irradiée non retournée ou retournée par rapport au reste de la piste.** En (a) et (b) nous avons considéré une situation où la région irradiée est orientée dans le même sens que le reste de la piste. Dans le cas (c) et (d), nous avons considéré le cas où la région irradiée a été renversée. Les figures (a) et (c) représentent l'aimantation  $M_z$  hors plan utilisée pour les calcul, et les figures (b) et (d) sont les cartographies du déplacement Zeeman du centre NV du diamant  $\Delta f_{NV}$  au-dessus de la piste de Ta|CoFeB|MgO, calculées numériquement, en utilisant les paramètres  $M_s = I_s/t$  et  $d$  mesurés précédemment. Les deux situations conduisent à des images de champ très différentes.



Nous avons ensuite appliqué à notre piste, irradiée localement et saturée vers le haut, un petit champ magnétique ( $\sim 7$  mT pendant 5 s), suivant l'axe vertical  $\hat{z}$ , dans le but de renverser la zone irradiée. Après l'application de ce champ magnétique, nous avons imagé de nouveau la région irradiée de la piste magnétique avec notre microscope, et obtenu les cartographies présentées en figure 3.11(a) et (b).

La première conclusion, en regard des simulations présentées en figure 3.10, est que l'on a bien uniquement retourné l'aimantation de la région irradiée. Cependant, bien que la paroi de domaine soit comme attendu bloquée au niveau de la région de transition entre zone irradiée et zone protégée dans le haut de l'image, dans le bas de la zone irradiée, la seconde paroi de domaine occupe une position tordue et ne se superpose pas au bord de la zone. Ceci est qualitativement reproduit par la simulation présentée en figure 3.11(c), en reprenant les paramètres mesurés sur la piste saturée. Il apparaît donc que la paroi demeure ancrée sur des défauts, potentiellement déjà présents avant l'étape d'irradiation, ou créés par de petites inhomogénéités de celle-ci. Dans tous les cas, cette expérience souligne l'importance d'utiliser des techniques suffisamment résolues spatialement pour imagier les parois de domaines. En effet, en microscopie Kerr, nous aurions constaté le retournement d'un domaine, comme attendu, mais il aurait été très difficile de mettre en évidence le fait que la paroi ne suivait pas exactement la frontière de la région irradiée.

Une des autres limitations du retournement sélectif dans notre piste de Ta|CoFeB(1)|MgO est que le domaine renversé n'est pas parfaitement stable. En effet, si on attend suffisamment longtemps – quelques heures – la zone irradiée se renverse de nouveau pour revenir à une situation où la piste est saturée. On remesure alors une cartographie comme celle présentée en figure 3.8(c).

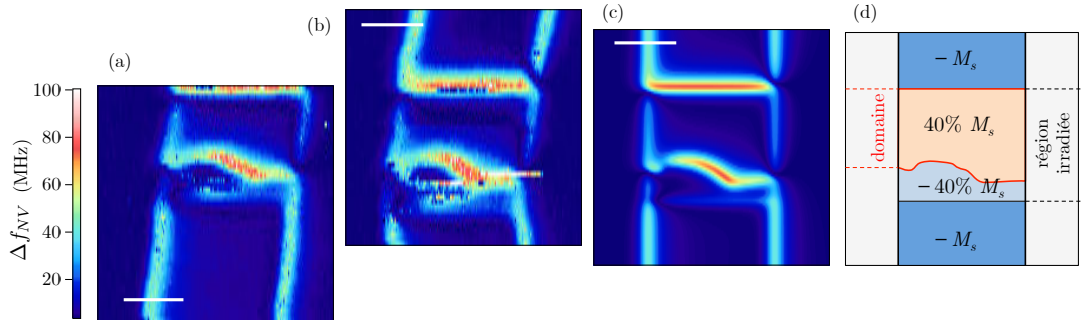


FIGURE 3.11 : **Retournement de domaine dans une piste irradiée.** (a) et (b) Cartographies du déplacement Zeeman du centre NV du diamant  $\Delta f_{NV}$  au-dessus de la piste de Ta|CoFeB|MgO irradiée présentée en figure 3.8, après application d'un champ de  $\sim 7$  mT opposé à l'orientation de la piste magnétique préalablement saturée. (c) Simulation des cartographies (a) et (b) en utilisant les paramètres mesurés au préalable sur la piste magnétique saturée  $I_s = 72,9 \mu_B/\text{nm}^2$  et  $42,5 \mu_B/\text{nm}^2$  dans la zone irradiée, et  $d = 62$  nm. Pour obtenir un bon accord visuel entre les images de champ, on est obligé d'utiliser un profil d'aimantation dans la couche tel que montré en figure (d). (d) Composante hors plan  $M_z$  de l'aimantation utilisée pour la simulation (c) ( $M_x = M_y = 0$ ). On constate que si la paroi est bien positionnée à la limite entre zone irradiée et non-irradiée dans le haut de l'image, elle suit un profil distordu non corrélé à cette transition dans le bas de l'image. Ce profil s'appuie d'ailleurs sur ce que l'on supposait être un défaut dans la figure 3.9(b), en bas à gauche de la zone irradiée. Remarque : le fait que la piste n'apparaisse pas droite correspond à des dérives de l'AFM. (Barres d'échelle : 500 nm)



**Perspectives** En conclusion de ces expériences préliminaires, on peut souligner le fait qu'une irradiation locale permet bien, même à des échelles micrométriques de retourner sélectivement des régions d'une piste magnétique.

Cependant, et bien que l'irradiation semble homogène à des échelles inférieures à la centaine de nanomètres, nous avons mis en évidence dans nos expériences que la présence de défauts dans la piste, dont nous ne savons s'ils ont été créés par l'étape d'irradiation, peut conduire à piéger la paroi de domaine ailleurs qu'à la frontière de la région irradiée. Ces effets, qui n'auraient pas nécessairement été détectables à de si petites échelles en microscopie Kerr, montrent qu'il est important de disposer de techniques suffisamment résolues pour étudier la rugosité des parois et leur interaction avec les défauts, dans la perspective de fabriquer des dispositifs utiles pour le stockage et le traitement de l'information. D'autre part, pour contrôler la position des domaines magnétiques dans de tels dispositifs par irradiation, il est encore nécessaire d'améliorer la qualité des procédés pour réduire l'influence des défauts, tout en conservant une certaine stabilité des domaines.

Une des solutions pour assurer le piégeage de paroi à des positions contrôlées pourrait être de créer des défauts ponctuels ou linéaires en irradiant localement une piste magnétique, plutôt que d'en irradier une région entière. Nous confirmons cependant que l'irradiation d'une petite partie du matériau semble en revanche un excellent moyen de déterminer les sites de nucléations pour les domaines magnétiques, et ce même à des échelles inférieures au micromètre. Cela rend en particulier possible le retournement de domaines microscopiques par application d'un champ externe macroscopique, ce qui peut constituer une alternative à la diminution en taille des têtes d'écriture dans les systèmes de stockage de l'information.

### 3.3 Conclusion

Nous avons développé une nouvelle méthode pour mesurer précisément la densité de moments magnétiques dans un échantillon ultra-mince à des échelles sub-micrométriques [165]. Ceci constitue un gain en résolution spatiale sur la mesure de  $M_s$  de quatre ordres de grandeur par rapport à l'état de l'art [161]. Cette amélioration de la résolution spatiale nous a permis d'obtenir une valeur exacte pour  $M_s$  dans des échantillons nano-structurés, ainsi que d'étudier les effets d'une irradiation locale par des ions  $\text{He}^+$  dans une piste magnétique. La connaissance exacte de  $M_s$  après l'irradiation nous a permis de simuler le champ magnétique attendu après avoir retourné sélectivement l'aimantation dans la région irradiée. En comparant ces simulations à des mesures expérimentales, nous avons ainsi mis en évidence le positionnement imparfait des parois de domaine, à des échelles nanométriques.

Ces mesures soulignent l'intérêt de disposer d'une mesure de champ qui soit à la fois résolue et quantitative. En outre, nous avons, par notre nouvelle façon de mesurer de  $M_s$  localement, accès à la **connaissance de la hauteur de vol  $d$  avec une précision de quelques nanomètres**. Cette technique permet donc de calibrer avec précision notre expérience. Nous allons voir dans le chapitre qui suit que cette connaissance précise des conditions expérimentales, alliée au caractère quantitatif de la mesure de champ dont, permettent d'adresser une problématique ouverte du nano-magnétisme : la détermination de la nature des parois de domaine dans les films ultra-minces ferromagnétiques.

# Nature des parois de domaine dans les films ultra-minces

## Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Contexte</b> . . . . .	<b>102</b>
4.1.1	Dynamique des parois sous l'action d'un courant - Transfert de spin . . . . .	102
4.1.2	Mesures de vitesses extrêmement grandes dans Pt Co AlO <sub>x</sub> . . . . .	105
4.1.3	Interaction de Dzyaloshinskii-Moriya . . . . .	107
4.1.4	Techniques de mesure de l'interaction DM . . . . .	110
<b>4.2</b>	<b>Détermination de la nature des parois par une mesure de champ de fuite</b> . . . . .	<b>114</b>
4.2.1	Principe : différence de champ de fuite entre parois de Bloch et de Néel . . . . .	114
4.2.2	Précision de la mesure . . . . .	117
4.2.3	Preuve de principe de la méthode . . . . .	119
<b>4.3</b>	<b>Preuve de la présence de l'interaction DM dans les couches ultra-minces</b> . . . . .	<b>122</b>
4.3.1	Parois de Néel dans Pt Co(0,6) AlO <sub>x</sub> . . . . .	122
4.3.2	Remplacement du substrat : X CoFeB(1) MgO . . . . .	125
<b>4.4</b>	<b>Conclusion</b> . . . . .	<b>130</b>

---

Afin de développer des systèmes efficaces reposant sur le déplacement des parois de domaines magnétiques sous l'action d'un courant, comme la *racetrack memory*, il est primordial que les parois puissent se propager rapidement. Parvenir à ce résultat sous-tend notamment la compréhension des mécanismes à l'origine de cette propagation. Cependant, en 2011, les modèles communément admis pour expliquer l'interaction entre le courant électrique et les parois ont été remis en question. Des vitesses de parois spectaculairement élevées dans des couches de Pt|Co|AlO<sub>x</sub> ne s'expliquaient pas dans le cadre de ces modèles [11, 13]. En particulier, tandis que la nature des parois était alors communément acceptée comme étant de type Bloch, pour des raisons d'énergie magnétostatique, il a été proposé qu'une interaction interfaciale pouvait forcer les parois dans une configuration

de Néel [10]. Ce changement de structure, en apparence mineur, peut en réalité avoir un impact considérable sur la dynamique des parois de domaine. En effet, une paroi de Bloch et une paroi de Néel peuvent être déplacées par des mécanismes physiques d'origines complètement différentes [7–9, 13].

Dans ce chapitre, nous allons discuter la présence de cette interaction, liée au couplage spin-orbite et survenant aux interfaces de certains films ferromagnétiques ultra-minces : l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DM). Il existe une manière simple de prouver l'existence de cette interaction. Puisqu'elle favorise les parois de Néel par rapport aux parois de Bloch, une mesure de la nature de la paroi permet directement de mettre en évidence l'interaction DM. C'est ce que nous nous proposons d'étudier dans ce chapitre.

Nous commencerons par une brève description du contexte qui a mené à l'introduction de l'interaction DM (§4.1) dans les modèles. Nous donnerons également plus de détails sur cette interaction, et sur les méthodes utilisées pour prouver son existence. Ensuite, nous présenterons la procédure que nous avons mis en œuvre afin de déterminer la nature des parois par une mesure de champ de fuite (§4.2). Nous appliquerons alors notre méthode à différents échantillons ferromagnétiques ultra-minces, pour y déceler la présence de l'interaction DM (§4.3). Nous observerons ainsi le lien qui existe entre cette interaction et les matériaux utilisés dans les couches étudiées.

## 4.1 Contexte

Nous allons ici brièvement introduire les grandes lignes du débat qui a été suscité en 2011 par les mesures de déplacement de parois à des vitesses extrêmement élevées, par Miron et collègues, dans des échantillons de Pt|Co(0.6)|AlO<sub>x</sub>. Pour cela nous commencerons par rappeler très succinctement les modélisations faisant consensus sur le déplacement des parois sous l'action d'un courant, ainsi que leurs conséquences.

### 4.1.1 Dynamique des parois sous l'action d'un courant - Transfert de spin

**Équation de Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG)** Modéliser la dynamique de l'aimantation dans le cadre du micromagnétisme revient à résoudre l'équation de Landau-Lifschitz [166], modifiée par l'ajout du terme phénoménologique d'amortissement introduit par Gilbert [167]

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M_s^2} \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) . \quad (4.1)$$

Dans cette équation,  $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$  représente l'orientation de l'aimantation,  $\gamma_0$  est le rapport gyromagnétique, et  $\alpha$  est le coefficient d'amortissement qui tend à ramener l'aimantation vers l'état d'équilibre parallèle à  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  si elle en est écartée.  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  est un champ effectif, prenant en compte le champ externe, mais intégrant également la somme des contributions de toutes les interactions présentées au chapitre 1 (échange, interaction démagnétisante, anisotropie...), et traduit donc les configurations d'équilibre de l'aimantation.

**Transfert de spin** L'équation de LLG (4.1) ne suffit pas à modéliser complètement l'action d'un courant électrique sur une paroi de domaine. Pour ce faire, on doit introduire des termes supplémentaires, traduisant l'interaction entre un courant polarisé en spin et l'aimantation. Ces couples sont appelés couples de transfert de spin [6]. Ils sont généralement divisés en deux catégories, suivant la direction du courant de spin par rapport à la couche magnétique. Le courant de spin peut être normal à la couche, on parle alors du courant perpendiculaire au plan (CPP dans la littérature), ou contenu dans celle-ci (CIP dans la littérature). Tandis que la considération des configurations CPP permet de bien expliquer le retournement des multicouches magnétiques, comme par exemple dans les jonctions tunnel magnétiques (MTJ), le cas de la propagation d'une paroi contenue dans une monocouche magnétique est généralement décrit par une configuration CIP. Nous commencerons donc par introduire les couples induits par la circulation d'un courant polarisé en spin **dans le plan de la couche magnétique**, ainsi que leur conséquence sur le déplacement des parois.

Lorsqu'un courant électronique circule dans un matériau magnétique, les électrons de conduction se polarisent en spin, par exemple du fait de l'interaction d'échange. Un couple sur l'aimantation survient lorsque le courant de spin n'est plus aligné avec celle-ci. Ceci se produit lorsque le courant de spin traverse une structure d'aimantation non-colinéaire, telle qu'une paroi de domaine.

La modélisation faisant consensus pour décrire les couples de transfert de spin qui surviennent alors consiste en l'ajout de deux termes dans l'équation de LLG (voir par exemple [7, 168, 169]) :

- le premier terme prend la forme  $\boldsymbol{\tau}_{\text{ad.}} = (d\mathbf{m}/dt)_{\text{ad.}} = (\mathbf{u} \cdot \mathbf{grad}) \mathbf{m}$ . Le vecteur  $\mathbf{u}$  a la dimension d'une vitesse, dirigée suivant le mouvement des électrons, et a pour norme  $u = JPg\mu_B / (2eM_s)$ , avec  $J$  la densité de courant (en  $\text{A}/\text{m}^2$ ),  $P$  la polarisation en spin des porteurs de charge et  $g$  le facteur de Landé ( $\approx 2$ ). Il mesure la force de l'interaction entre courant de spin et aimantation. Ce premier couple  $\boldsymbol{\tau}_{\text{ad.}}$  est qualifié **d'adiabatique**. En effet, il s'interprète comme la conservation du moment cinétique total, lorsque le spin de l'électron demeure aligné avec l'aimantation qu'il traverse. Le retournement du spin de l'électron de conduction à la traversée de la paroi implique que l'aimantation subisse un couple en retour (voir par exemple les références [6, 29, 168]).
- le second terme est par opposition qualifié de couple « non-adiabatique ». Ce terme peut en effet être considéré comme l'action sur l'aimantation de la composante hors équilibre du courant de spin qui, à la traversée de la paroi, n'est pas immédiatement alignée avec l'aimantation. Il est décrit par  $\boldsymbol{\tau}_{\text{n.-ad.}} = d\mathbf{m}/dt_{\text{n.-ad.}} = \beta \mathbf{m} \times (\mathbf{u} \cdot \mathbf{grad}) \mathbf{m}$ . Le facteur  $\beta$  détermine l'amplitude du couple non-adiabatique, par rapport au couple adiabatique.  $\beta$  est petit devant l'unité, comparable au terme d'amortissement  $\alpha$ . La discussion détaillée de l'origine de cette composante dépasse très largement le périmètre de cette thèse, et nous ne souhaitons pas l'aborder ici. Nous insisterons simplement sur le fait que  $\beta$  est uniquement lié au matériau et sur l'importance cruciale de la composante non-adiabatique dans les expériences de propagation de paroi [168, 170, 171].

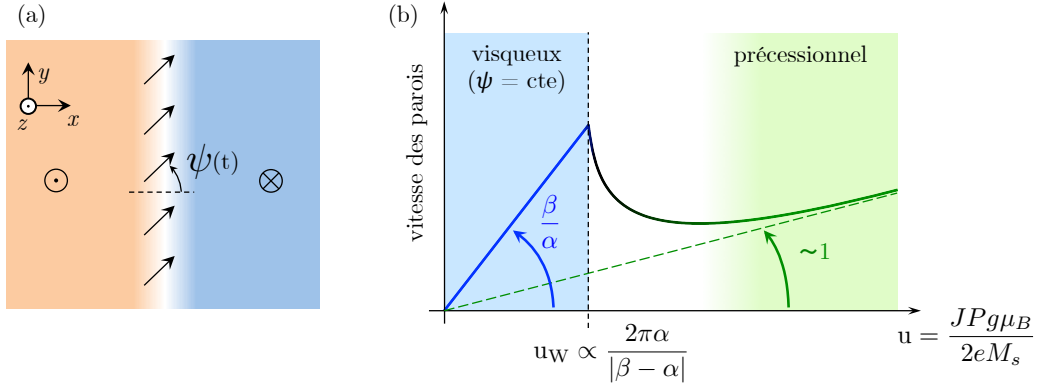


FIGURE 4.1 : **Régimes visqueux et précessionnel.** (a) Rappel de la géométrie de la paroi, définie au chapitre 1. L'angle  $\psi$  désigne l'orientation de l'aimantation planaire. (b) Tracé schématisé présentant les deux régimes de vitesse de déplacement de paroi de domaine sous l'action d'un courant circulant dans le plan de couche magnétique ultra-mince, dans le cas  $\beta > \alpha$ . Dans les deux cas, la vitesse de la paroi est proportionnelle à la densité de courant  $J$ . La propagation est plus efficace d'un facteur  $\beta/\alpha$  dans le régime visqueux, mais l'extension de ce régime est limitée par  $u_W \sim \alpha/|\beta - \alpha|$ . Au-delà, l'aimantation de la paroi se met à précesser ( $\psi(t)$  varie continuellement) et la vitesse s'effondre.

**Régime visqueux & régime précessionnel** En faisant des hypothèses simplificatrices sur la structure d'aimantation (paroi "rigide", à une dimension, et décrite entièrement par l'angle de sa composante planaire  $\psi$  [cf. figure 4.1(a)]), il est possible de résoudre analytiquement l'équation de LLG décrivant le mouvement de la paroi sous l'action d'un courant dans le plan de la couche. Une discussion détaillée d'une telle résolution analytique est par exemple donnée dans la référence [169].

La première conclusion qui ressort de la résolution de l'équation de LLG est que, contrairement à l'intuition, **seul le terme non-adiabatique en  $\beta$**  permet de contribuer efficacement à un déplacement de la paroi dans les couches ultra-minces. D'autre part, le calcul du mouvement d'une paroi sous l'action d'un courant planaire (CIP) permet de distinguer deux régimes pour la propagation de la paroi, ce que nous avons décrit schématiquement en figure 4.1(b). Ces régimes sont très analogues à ceux qui surviennent lors de la propagation de la paroi sous l'effet d'un champ externe.

- Le premier régime est un régime qualifié de **visqueux**. Dans ce régime, l'angle décrivant l'orientation de l'aimantation planaire  $\psi$  demeure constant au cours de la propagation ( $\dot{\psi} = 0$ ). La vitesse en régime stationnaire de la paroi est proportionnelle au courant, et est alors donnée par  $v_{\text{stat.}} = \beta u / \alpha$ . Ce régime tient jusqu'à une vitesse critique  $u_W$ , dont la valeur dépend de la géométrie de l'expérience et du matériau. En particulier on a  $u_W \propto \alpha / |\beta - \alpha|$ . Cette vitesse est souvent appelée limite de Walker, par analogie avec la propagation sous l'effet d'un champ externe. Puisque la vitesse  $u$  est proportionnelle au courant électronique  $J$ , la limite de Walker correspond de manière équivalente à un courant critique  $J_W$ .

- Le second régime, dit **précessionnel**, s'établit au-delà de ce courant limite  $J_W$ . Dans ce régime, le courant de spin, trop intense, conduit à la précession de l'aimantation planaire, et la vitesse de la paroi s'effondre. Avec la précession, la paroi avance et recule périodiquement, conduisant à un mouvement global vers l'avant, mais beaucoup plus lent que dans le régime visqueux. La vitesse moyenne de ce mouvement pour les grands courants est donnée par  $\bar{v}_{\text{lim}} = u(1 + \alpha\beta) / (1 + \alpha^2) \sim u$ , ce qui peut s'interpréter comme la conservation du moment cinétique.

Dans les deux cas, la direction de la propagation de la paroi a lieu dans une direction imposée par le signe de  $\beta$  et de la polarisation des électrons  $P$ . Dans les métaux de transition, on peut s'attendre à  $P > 0$  et  $\beta > 0$ . La paroi est alors supposée se propager dans la même direction que la propagation des électrons. Dans certains matériaux, cependant, et notamment le semiconducteur (Mn,Ga)As, des propagations à l'encontre du mouvement des électrons ont été interprétées comme résultant d'une polarisation en spin du courant électronique négative [172].

Dans la pratique, on souhaite déplacer les parois le plus rapidement possible, tout en gardant des courants faibles pour des questions de consommation énergétique, mais également pour éviter de surchauffer le matériau par effet Joule. Ceci est important afin d'accéder efficacement aux données dans des systèmes comme la *race-track memory*, sans toutefois effacer l'information en dépassant la température de Curie, ou même détruire le matériau. Pour déplacer rapidement la paroi, on pourrait souhaiter avoir une grande valeur de  $\beta$ , par rapport à l'amortissement  $\alpha$ , de façon à ce qu'elle se propage vite en régime visqueux ( $v_{\text{stat.}} = \beta u / \alpha$ ). Dans ce cas cependant, la vitesse critique  $u_W \propto \alpha / |\beta - \alpha|$  est atteinte à des courants plus faibles, et on ne gagne pas en efficacité. On est donc en principe limité à une vitesse de l'ordre de la constante  $u = JPg\mu_B / (2eM_s)$ .

Des expériences récentes ont cependant soulevé des questions sur la validité de ce modèle. Même dans le cas d'une monocouche magnétique, il semble que les couples de transfert de spin induits par un courant dans le plan de la couche (CIP) ne suffisent pas à expliquer l'ensemble des observations expérimentales. Dans certains matériaux, où la couche magnétique repose sur un substrat présentant un fort couplage spin-orbite, les parois atteignent des vitesses très élevées sous courant. Il est donc nécessaire de raffiner le modèle des mécanismes conduisant à la propagation.

#### 4.1.2 Mesures de vitesses extrêmement grandes dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub>

En 2011, des mesures de vitesses de parois ultra-élevées sous l'action d'un courant planaire réalisées par le groupe de Miron et collègues [11], dans un échantillon de Pt|Co|AlO<sub>x</sub> ont ouvert un grand débat sur la modélisation de la propagation des parois de domaines sous l'action d'un courant. Ces mesures, reproduites en figure 4.2, indiquent en effet que les parois sont trop rapides pour que leur déplacement soit expliqué par une propagation en régime précessionnel. Cependant, si ces vitesses correspondent au régime visqueux, son extension est beaucoup plus longue que ce qui serait attendu du fait de la limite de Walker. D'autre part, la propagation des parois est opposée à celle des électrons, ce qui *a priori* semble surprenant dans un métal de transition.

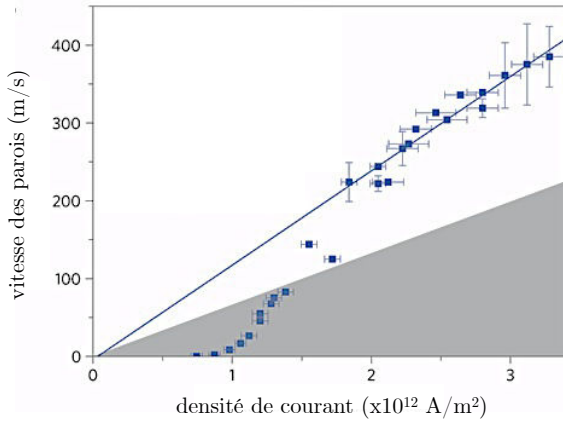


FIGURE 4.2 : Mesures de vitesse de parois sous l'action d'un courant dans Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub>, tirées de l'article de Miron *et al.* [11]. La zone grisée représente les vitesses atteignables dans le régime précessionnel. Les points expérimentaux (en bleu) sont au-delà de cette limite, et donc supposément dans le régime visqueux. De manière surprenante, on n'observe pas d'effondrement de la vitesse dû à la limite de Walker.

L'hypothèse avancée dans l'article de Miron *et al.* [11] est l'existence d'un fort effet Rashba, présent à l'interface Pt|Co du fait de la brisure de symétrie d'inversion. L'effet Rashba a en effet comme conséquence l'apparition d'un champ effectif à l'interface, parallèle au plan de la couche magnétique, lorsqu'un courant planaire circule au niveau de l'interface avec le substrat. Ce champ interne, parallèle à l'aimantation planaire d'une paroi de Bloch, s'opposerait à la précession, maintenant la paroi dans le régime visqueux. Dans ce scénario, la direction de propagation des parois serait possiblement due à une valeur négative pour  $\beta$ . Ceci a notamment été prédit dans certains modèles pour une paroi très étroite [173], ce qui est le cas dans Pt|Co(0.6)|AlO<sub>x</sub>, où la largeur de paroi est de l'ordre de  $\Delta_B \sim 6$  nm.

Malgré la vraisemblance de cette hypothèse, un article de Liu et collègues, étudiant le retournement d'aimantation induit par courant dans des couches de Pt|Co|AlO<sub>x</sub> [12], a conclu en 2012 à l'absence d'effet Rashba dans ce matériau. Dans cet article, les mesures sont en effet intégralement expliquées par un autre effet lié au couplage spin-orbite dans le substrat de platine, l'effet Hall de spin (SHE). L'effet Hall de spin, illustré en figure 4.3, consiste en l'apparition d'un courant de spin, transverse à l'application d'un courant de charge, dans un matériau à fort couplage spin-orbite. Ce courant de spin peut diffuser à travers l'interface entre substrat et couche magnétique, et conduire à des couples sur l'aimantation. Ceux-ci sont donc très similaires aux couples introduits par Slonczewski pour décrire le retournement d'aimantation dans les valves de spin, où un courant polarisé en spin circule au travers d'une couche aimantée (géométrie CPP). La contribution principale du SHE prend la forme  $\boldsymbol{\tau}_{\text{SHE}} = \gamma_0 \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times H_{\text{SHE}} \mathbf{u}_y)$ , où  $H_{\text{SHE}}$  dépend directement du courant de spin, et donc du courant de charge et du ratio de conversion du courant de charge en courant de spin (voir par exemple [12, 13]). Il existe un second terme, en  $\mathbf{m} \times H_{\text{SHE}} \mathbf{u}_y$  mais dont l'importance est *a priori* négligeable [174]. Notons également que l'effet Rashba peut conduire, par diffusion de spins depuis l'interface, aux mêmes types de couples. L'ensemble de ces couples est généralement regroupé sous la dénomination de couples de spin-orbite, ou *spin orbit torques* (SOT) en anglais [8, 9].

Le problème posé par l'expérience de Liu et collègues est que le couple induit par SHE ne peut, pour des questions de symétrie, déplacer une paroi de Bloch. Il en va de même pour l'ensemble des SOT, comme l'a été confirmé par des simulations micromagnétiques menées par Khvalkovskiy et collègues [8]. Le couple induit par SHE peut en revanche déplacer des parois de Néel de manière très efficace. L'article de Liu et collègues [12]

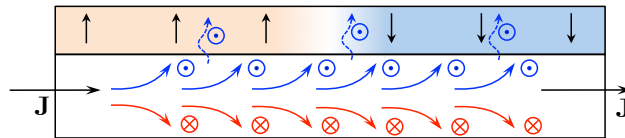


FIGURE 4.3 : **Effet Hall de spin.** L'application d'un courant de charge  $\mathbf{J}$  dans un matériau à fort couplage spin-orbite comme le platine peut donner lieu à un courant de spin, transverse au courant de charge. Dans un échantillon où une couche magnétique repose sur un substrat métallique à fort couplage spin-orbite, ce courant de spin peut diffuser au-delà des interfaces, dans la couche magnétique, et conduire à un couple sur l'aimantation.

suggérerait donc la présence de parois de Néel dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub>, mais ceci semble improbable, puisque les parois de Bloch sont plus stables du point de vue magnétostatique que les parois de Néel [cf. chapitre 1].

En 2012, une explication a été proposée par A. Thiaville *et al.* pour expliquer la présence de parois de Néel dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub> [10], expliquant ainsi les vitesses présentées en figure 4.2. La brisure de symétrie d'inversion à l'interface Pt|Co, qui dans l'explication de Miron *et al.* [11, 34] serait la source d'un fort effet Rashba, pourrait donner lieu à une interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DM), au niveau de l'interface. L'existence d'une telle interaction, chirale, et favorisant les parois de Néel, a en effet été prédite dans les années 1990 par A. Fert, à l'interface avec un matériau à fort couple spin-orbite. Elle a notamment été observée par SP-STM dans des couches ultra-minces épitaxiées de W|Mn [175, 176], W|Fe [177, 178] et Ir|Fe [179].

Finalement, deux scénarios différents s'opposent pour expliquer les mesures de vitesses de parois dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub>. Le premier correspond à l'hypothèse de Miron *et al.*, pour lequel des parois de Bloch sont déplacées par un courant polarisé en spin, planaire, et où un fort champ d'origine Rashba gèle la précession de la paroi. Celle-ci peut donc être déplacée efficacement par le transfert de spin non-adiabatique. Le second scénario, proposé par Thiaville *et al.*, suppose des parois de Néel, stabilisées par une forte interaction DM, et déplacées efficacement par un courant de spin perpendiculaire à la couche, issu du SHE.

Ces deux scénarios peuvent en principe expliquer les mesures de l'article original de 2011, comme vérifié notamment par les calculs de Martinez et collègues [13]. Une manière directe de trancher ce débat serait de déterminer la nature des parois, et ainsi de mettre ou non en évidence la présence de DM. Après avoir donné un peu plus de détails sur l'interaction DM et ses conséquences, nous allons donc présenter une méthode pour mesurer directement la nature des parois, par microscopie NV.

### 4.1.3 Interaction de Dzyaloshinskii-Moriya

L'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya peut être considérée comme un terme additionnel d'interaction d'échange, qui, à la différence de l'interaction d'échange symétrique de Heisenberg présentée au chapitre 1, prend une forme chirale. Microscopiquement, ce terme supplémentaire prend la forme

$$\mathcal{E}_{\text{DM}} = \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) .$$



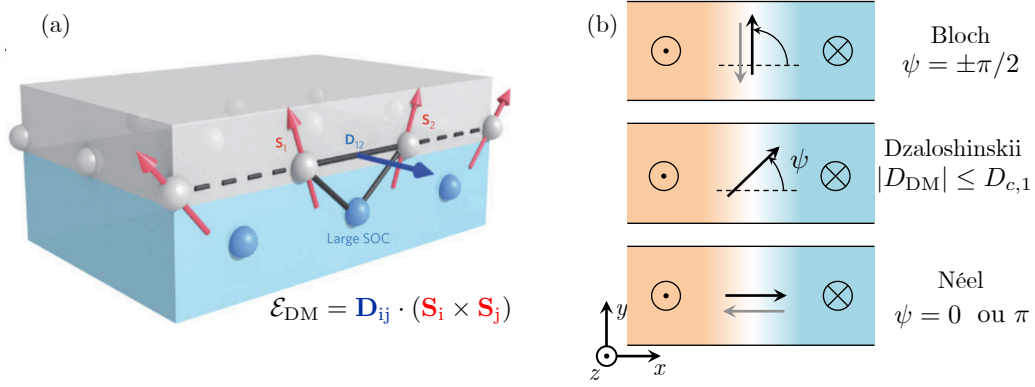


FIGURE 4.4 : **Interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DM) d'interface.** (Figure adaptée de la référence [181]) Schéma illustrant l'effet de l'interaction DM, pouvant survenir à l'interface entre un matériau magnétique et un matériau à fort couplage spin-orbite. L'interaction, chirale, tend à écarter les spins d'une configuration parallèle. Le vecteur  $\mathbf{D}_{ij}$  associé à l'interaction DM d'interface est perpendiculaire à l'axe reliant les deux spins  $\mathbf{S}_i$  et  $\mathbf{S}_j$ , et favorise donc les parois de Néel. (b) Différentes configurations possibles pour la paroi, définies par l'angle  $\psi$  de l'aimantation planaire, suivant la force de l'interaction DM.

Cette interaction antisymétrique ne peut exister que dans des matériaux ne présentant pas de symétrie d'inversion. Par exemple, l'interaction DM est à l'origine de textures magnétiques chirales, telles que des spirales de spin ou des réseaux de skyrmions dans les solides de faible symétrie tels que  $\text{BiFeO}_3$ . En revanche, l'interaction DM est généralement absente dans les métaux de transition (Fe, Co) dont la structure cristalline est symétrique. Toutefois, un terme chiral tel que celui de DM peut apparaître aux interfaces, où, même pour les métaux de transition, la symétrie d'inversion est naturellement brisée. Dans ce cas,  $\mathbf{D}_{ij}$  est perpendiculaire à la direction  $\mathbf{u}_{ij}$ , comme illustré en figure 4.4(a). Sous les hypothèses du micro-magnétisme, on peut en déduire une densité volumique d'énergie en passant au continu (voir par exemple [10, 180]) :

$$E_{\text{DM}} = D_{\text{DM}} \left[ \left( m_x \frac{\partial m_z}{\partial x} - m_z \frac{\partial m_x}{\partial x} \right) + \left( m_y \frac{\partial m_z}{\partial y} - m_z \frac{\partial m_y}{\partial y} \right) \right]$$

avec  $D_{\text{DM}} \propto 1/t$ . Ainsi, de la même manière que l'anisotropie d'interface peut jouer un rôle prépondérant pour des films ultra-minces, l'interaction DM survenant aux interfaces peut prendre une importance considérable dans des matériaux aux dimensions réduites. C'est notamment ce qui a été mis en évidence en SP-STM, dans le cas de mono- ou bicouches atomiques de matériau magnétique, reposant sur un substrat à fort couplage spin-orbite, comme  $\text{W|Mn}$  [175, 176],  $\text{W|Fe}$  [177, 178] et  $\text{Ir|Fe}$  [179]. Nous allons maintenant détailler l'effet de l'interaction DM d'interface sur la structure d'une paroi de domaine, au travers de sa contribution énergétique.

**Conséquence de l'interaction DM d'interface sur l'énergie de la paroi** Il est relativement simple de montrer, comme dans la référence [10], que l'interaction DM d'interface n'affecte pas directement le profil d'aimantation transverse de la paroi, ainsi que sa largeur  $\Delta_B$ . On montre également que l'énergie surfacique de la paroi  $\sigma$ , introduite dans l'équation (1.2) du chapitre 1, est modifiée par l'ajout d'un terme  $\sigma_{\text{ext}} = -\pi D_{\text{DM}} \cos(\psi)$ ,

où  $\psi$  est l'orientation de l'aimantation dans le plan [figure 4.4(b)]. On obtient donc au total une énergie de paroi

$$\sigma = 4\sqrt{A_{\text{éch.}}K_{\text{eff}}} + 2\Delta_B N_x K_d \cos^2(\psi) - \pi D_{\text{DM}} \cos(\psi) \quad (4.2)$$

où on rappelle que  $N_x \approx \ln(2)t/(\pi\Delta_B) \ll 1$  est le coefficient démagnétisant associé à la composante planaire de la paroi [10, 38], et que  $K_d = \mu_0 M_s^2/2$  est la densité maximale d'énergie démagnétisante introduite dans le chapitre 1.

Il apparaît dans l'équation (4.2) que le champ démagnétisant (deuxième terme) est en compétition avec l'interaction DM d'interface (troisième terme) pour déterminer l'angle  $\psi$ . La configuration au repos de la paroi est ainsi donnée par la minimisation de l'énergie de l'équation (4.2), par rapport au paramètre  $\psi$ . On trouve, suivant la valeur de  $D_{\text{DM}}$

$$\psi = \begin{cases} 0 & \text{si } D_{\text{DM}} > D_{c,1} \\ \arccos\left(\frac{D_{\text{DM}}}{D_{c,1}}\right) & \text{si } D_{\text{DM}} \leq D_{c,1} \\ \pi & \text{si } D_{\text{DM}} < -D_{c,1} \end{cases} \quad (4.3)$$

où l'on a fait apparaître le seuil  $D_{c,1} = 4\Delta_B N_x K_d/\pi$ . Ce seuil correspond à la valeur de  $D_{\text{DM}}$  pour laquelle l'énergie associée à l'interaction DM surpasse la différence d'énergie démagnétisante entre une paroi de Bloch et une paroi de Néel. Au-delà de ce seuil, l'interaction DM force les parois purement dans une configuration de type Néel ( $\psi = 0$  ou  $\pi$ ), dont la chiralité est fixée par le signe de  $D_{\text{DM}}$ . Lorsque la valeur  $|D_{\text{DM}}|$  est inférieure à  $D_{c,1}$ , l'orientation de  $\psi$  correspond à un compromis entre énergie démagnétisante et interaction DM.

De cette discussion apparaît une manière simple de déterminer la présence de l'interaction DM. En effet, puisque celle-ci détermine l'orientation de l'aimantation planaire de la paroi, une mesure directe de la structure des parois permet la mise en évidence de l'interaction DM d'interface<sup>1</sup>.

Ceci explique pourquoi les premières preuves de la présence de l'interaction DM ont été fournies par SP-STM [86, 175–179] dans des monocouches atomiques. Outre ces mesures, des études par SPLEEM ont permis de révéler la présence de parois de Néel, et donc de l'interaction DM d'interface, dans de nombreux échantillons ultra-minces [72–74]. Malgré ces résultats étayant l'hypothèse de Thiaville *et al.* [10], ces mesures de l'interaction DM restent confinées à des échantillons modèles. En effet, comme nous l'avons vu au chapitre 1, les techniques qui peuvent mettre en évidence la nature des parois, sont majoritairement réservées à des échantillons très spécifiques, du fait de fortes contraintes (ultra-vide, échantillon conducteur, monocristallin, etc.). Il n'est donc pas possible d'étudier avec ces techniques des couches telles que Pt|Co|AlO<sub>x</sub>, ou tout autre échantillon du même type, utilisés pour étudier la propagation des parois de domaine sous l'action d'un courant.

Dans le paragraphe qui suit, nous présenterons ainsi différentes stratégies qui ont été développées afin de prouver la présence de l'interaction DM d'interface, dans des échantillons "usuels".

1. Quand l'orientation des parois s'écarte du profil de Bloch ( $\psi = \pm\pi/2$ ) du fait de l'interaction DM, celles-ci sont parfois désignées sous le terme de « parois de Dzyaloshinskii ».

## 4.1.4 Techniques de mesure de l'interaction DM

### 4.1.4.1 Mesure de l'interaction DM par des études dynamiques

La majorité des études visant à prouver l'existence de l'interaction DM dans des échantillons courants a été réalisée en observant la propagation de parois de domaines magnétiques, sous champ externe ou sous courant. Dans ces expériences, l'idée est d'annuler l'effet de l'interaction DM par l'application d'un champ planaire.

**Champ planaire associé à l'interaction DM** Il est intéressant de remarquer dans l'équation (4.2) que le terme d'énergie associé à l'interaction DM a exactement la même forme que celui d'un champ planaire appliqué suivant la direction  $\hat{x}$ . Dans ce cas, le terme d'énergie Zeeman de la paroi s'écrit en effet  $\sigma_{Hx} = \mu_0 \pi \Delta_B M_s H_x \cos(\psi)$ . On peut donc décrire l'effet de l'interaction DM sur la paroi comme l'action d'un champ planaire de norme  $H_{DM} = D_{DM}/\mu_0 \Delta_B M_s$ , ce qui a deux conséquences importantes.

La première concerne la propagation des parois. En effet, la présence de l'interaction DM force l'aimantation planaire de la paroi dans une configuration de type Néel. Ceci empêche la précession de la paroi, retardant l'apparition du régime précessionnel. Cette conclusion est notamment détaillée dans l'article de Thiaville *et al.* [10], où elle est validée par des calculs micromagnétiques de propagation sous l'effet d'un champ perpendiculaire à la couche magnétique. L'interaction DM joue en ce sens un rôle assez similaire à l'effet Rashba dans l'hypothèse de Miron *et al.*, à ceci près qu'elle bloque la paroi dans une configuration de Néel et non de Bloch.

La seconde conséquence de la similarité entre l'interaction DM d'interface et un champ planaire interne est qu'il est possible de compenser son effet, en appliquant un champ externe, dans le plan de l'échantillon. Puisque la propagation des parois est fortement gouvernée par leur nature (Bloch ou Néel), la compensation du champ associé à l'interaction DM conduit à des changements notables dans les vitesses de propagation de parois. C'est la stratégie qui a été majoritairement poursuivie pour mettre en évidence la présence de cette interaction dans les couches ultra-minces.

**Propagation de la paroi induite par des impulsions de champ magnétique** Le premier type de mesures qui ont été réalisées pour mettre en évidence l'interaction DM dans les couches ultra-minces repose sur des expansions de bulles magnétiques par l'application d'un champ perpendiculaire au matériau. En ajoutant un champ planaire, on déstabilise la paroi de Néel d'un côté de la bulle, tandis qu'on la renforce dans l'autre sens. On obtient ainsi des propagations asymétriques, où la bulle s'étend plus rapidement dans une des directions du champ planaire. Le principe est décrit en figure 4.5, adaptée de l'article de S.-G. Je *et al.* [182]. En utilisant cette méthode, le groupe de Je a mis en évidence la présence de l'interaction DM dans une couche de Pt( $t_1$ )|Co|Pt( $t_2$ ) où la symétrie d'inversion était brisée en utilisant différentes épaisseurs  $t_1$  et  $t_2$  de platine. A. Hrabec et collègues ont présenté une étude similaire, comparant des interfaces épitaxiées ou créées par pulvérisation [183], en étudiant également l'interface Pt|Co.

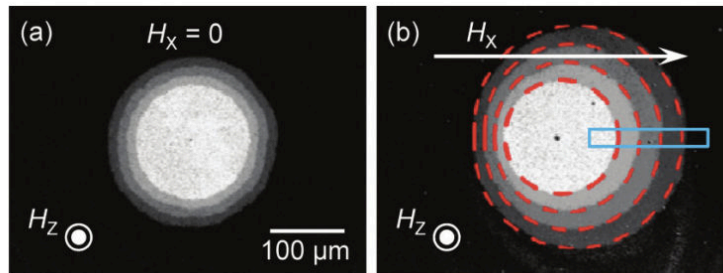


FIGURE 4.5 : **Expansion de bulle magnétique en appliquant un champ planaire.** (a) et (b) sont tirées de l'article de Je et collègues [182]. Ces images successives de microscopie Kerr en appliquant les impulsions de champ  $H_z$  à une bulle magnétique montrent l'expansion asymétrique, attribuée à la compensation de l'interaction DM par un champ planaire  $H_x$ .

Ces mesures sous champ, si elles semblent convaincantes pour prouver la présence de l'interaction DM, posent tout de même le problème d'être réalisées en régime de reptation de la paroi (paroi piégée par les défauts). En conséquence, la dynamique de l'aimantation n'est pas nécessairement simplement gouvernée par l'angle  $\psi$  de l'aimantation planaire de la paroi, et il n'est pas trivial d'attribuer le résultat des observations à l'interaction DM.

**Propagation de la paroi sous l'action d'un courant** La seconde approche, toujours en appliquant un champ planaire pour compenser l'effet de l'interaction DM, est d'étudier le mouvement des parois sous l'action d'un courant. De cette façon, de nombreux groupes ont obtenu des résultats en très bon accord avec des prédictions prenant en compte l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya. Parmi ces mesures, on peut citer une estimation de  $|D_{DM}| \approx 1,2 \text{ mJ/m}^2$  dans Pt|CoFe(0,6)|MgO et de  $|D_{DM}| \approx 0,053 \text{ mJ/m}^2$  dans Ta|CoFe(0,6)|MgO par S. Emori *et al.*, avec une chiralité gauche [184].

Les résultats de Franken *et al.* [185], tendent à confirmer une possibilité de changer la force effective de l'interaction DM, en changeant les épaisseurs de platine dans des échantillons de Pt( $t_1$ )|Co|Pt( $t_2$ ), et suggèrent une très forte valeur pour  $D_{DM}$  dans des échantillons de Pt|Co(0,4)|AlO<sub>x</sub>. Leurs résultats semblent souligner, comme dans les études [182, 183], une forte importance de la qualité de l'interface sur l'interaction DM.

L'article de Ryu *et al.* [186] indique également, par le même type de mesures, la présence de l'interaction DM à l'interface Pt|Co.

L'ensemble des études de l'interaction DM effectuées via l'observation de la propagation des parois sous courant constitue donc un faisceau d'indices, convergent vers la confirmation de la présence d'une forte interaction DM à l'interface Pt|Co. Il existe cependant un problème inhérent à ces expériences de propagation de parois sous l'action d'un courant. Celles-ci nécessitent toujours la modélisation de la dynamique de la paroi, ce qui sous-tend inévitablement des hypothèses, du fait de la multiplicité des mécanismes physiques en jeu (transfert de spin direct, couples liés à l'interaction spin-orbite, etc.). Par exemple, les expériences de Miron *et*

*al.* peuvent s'expliquer par différents scénarios [11, 13]. Aussi poussées que soient les analyses de données dans les études de propagation de parois sous courant, il n'est ainsi jamais exclu que l'action d'un couple, négligé dans la modélisation, puisse changer les conclusions. D'autre part, dans les cas d'une interaction DM très forte, les champs planaires à appliquer pour compenser  $H_{DM}$  sont considérables. Outre la complexité d'appliquer de tels champs, l'aimantation de la couche magnétique n'est alors plus du tout perpendiculaire, ce qui rajoute une couche supplémentaire de complexité dans les interprétations.

De manière générale, les mises en évidence de l'interaction DM par des mesures de dynamique de paroi constituent donc de bons indicateurs, mais demeurent soumises à caution pour leur caractère indirect. Il apparaît donc nécessaire de disposer d'une méthode directe afin d'étudier l'interaction DM. Outre une mesure statique de la structure des parois, il existe une méthode alternative, consistant à mesurer l'effet de l'interaction DM d'interface sur les ondes de spin.

#### 4.1.4.2 Mesure de l'interaction DM par diffusion Brillouin de la lumière

L'interaction DM d'interface est une interaction asymétrique, qui n'existe que lorsque la symétrie d'inversion est brisée. Cette asymétrie peut en particulier se retrouver dans la propagation des ondes de spin. Il a notamment été prédit que l'effet de l'interaction DM cause un changement dans la relation de dispersion entre la fréquence  $f_{os}$  et le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_{os}$  des résonances de spin en géométrie de Damon-Eshbach (DE). Dans cette géométrie [figure 4.6(a)], un très fort champ magnétique permet d'aligner l'aimantation dans le plan de l'échantillon, par exemple dans la direction  $\hat{x}$ . Les ondes de spin se propagent dans la direction transverse,  $\hat{y}$ , et consistent en la précession de l'aimantation autour du fort champ externe. L'effet de l'interaction DM peut se comprendre comme celui du champ planaire associé  $H_{DM}$ , qui peut soit favoriser la précession, soit la ralentir, suivant la direction de l'onde de spin [187]. La mesure de la relation de dispersion, entre la fréquence  $f_{os}$  et le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_{os}$  des ondes de spin, doit en conséquence permettre d'attester de la présence de l'interaction DM d'interface.

Une manière de mesurer cette relation de dispersion est d'utiliser une technique de spectroscopie reposant sur la diffusion Brillouin de la lumière (BLS). La diffusion Brillouin est une diffusion inélastique de la lumière, résultant d'un couplage non-linéaire entre les photons et les ondes de spin. Lors du processus de diffusion Brillouin, l'énergie et l'impulsion totale sont conservées. Dans une expérience de BLS, le plan d'incidence de la lumière contient la direction de propagation des ondes de spin  $\hat{y}$ . Du fait de la conservation de l'impulsion, un angle d'incidence de la lumière correspond à un vecteur d'onde  $\mathbf{k}_{os}$  d'une onde de spin. Du fait de la conservation de l'énergie, la fréquence des photons diffusés est décalée de la fréquence  $\pm f_{os}$  de l'onde de spin. En changeant l'angle d'incidence de la lumière sur la couche magnétique, on a ainsi directement accès à la relation de dispersion, en mesurant les décalages en fréquence Stokes (S)  $f_S = -f_{os}$ , et anti-Stokes (AS)  $f_{AS} = +f_{os}$ , de la fréquence de la lumière rétro-diffusée.

La mesure de la relation de dispersion des résonances de spin de Damon-Eshbach par BLS permet de déduire directement la valeur de  $D_{DM}$  [figure 4.6(b)]. La technique est très performante, et a notamment permis de

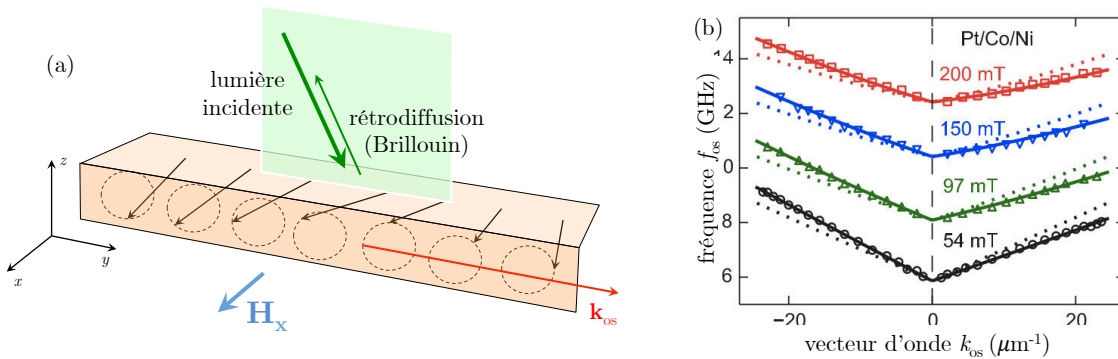


FIGURE 4.6 : **BLS**. (a) Schéma de l'expérience de mesure de l'interaction DM par BLS. On mesure la fréquence de la lumière rétrodiffusée par la couche magnétique, laquelle a été saturée dans le plan de la couche magnétique, perpendiculairement au plan d'incidence de la lumière. Ceci permet de mesurer la relation de dispersion  $f_{os}(k_{os})$ . (b) Mesure tirée de l'article de Di *et al.* [188]. Il existe une asymétrie entre la propagation suivant les  $k_{os}$  positifs et les  $k_{os}$  négatifs, qui est indépendante du champ  $H_x$  appliqué. Cette asymétrie est la signature de l'interaction DM d'interface.

mesurer l'interaction DM dans des échantillons ultra-minces de Pt|Co|Ni [188], Pt|NiFe [189], et Pt|CoFeB [22].

La mesure de l'interaction DM par BLS ne présente d'autre part que peu de limitations, que nous allons brièvement détailler. Tout d'abord, le signal rétrodiffusé est extrêmement faible, en particulier pour les grands angles d'incidence de la lumière. En conséquence il est nécessaire de réaliser des acquisitions de données très longues, de plusieurs heures par angle d'incidence (voir par exemple [188]).

Par ailleurs, il faut être capable de distinguer l'asymétrie induite par l'interaction DM dans la relation de dispersion des ondes de spin. Ceci nécessite une valeur de  $D_{DM}$  suffisamment importante, pour induire un décalage en fréquence significatif par rapport à la précision de la mesure de la fréquence  $f_{os}$  pour un  $\mathbf{k}_{os}$  donné. En particulier, si l'amortissement  $\alpha$  est grand, les ondes de spin ont un très faible temps de vie, et la fréquence  $f_{os}$  est mal définie. Il peut également exister d'autres sources d'asymétrie dans la relation de dispersion des résonances de Damon-Eschbach. Notamment, quand l'anisotropie d'interface est différente sur les deux faces de la couche magnétique, on peut avoir un effet semblable à celui de l'interaction DM. Il est donc important d'être capable d'écarter cette hypothèse (voir par exemple [188]). En résumé, la mesure par BLS est plus appropriée aux grandes valeurs de  $D_{DM}$ , de l'ordre du  $\text{mJ}/\text{m}^2$ , bien qu'il soit possible de mesurer  $D_{DM}$  avec une précision de l'ordre de  $0,02 \text{ mJ}/\text{m}^2$  [22, 188, 189].

Enfin, on peut souligner que les mesures par BLS sont réalisées sur des films étendus, et donc non-structurés. Ceci ne représente cependant pas un problème crucial.

En conclusion, la mesure de l'interaction DM par BLS est une technique très efficace, du moment que la valeur de  $D_{DM}$  est suffisamment importante. Cette méthode s'est ainsi imposée comme une technique de mesure presque incontournable pour étudier l'interaction DM d'interface ainsi que son origine, en fournissant une mesure quantitative de  $D_{DM}$  pour différents matériaux.

Nous avons présenté différentes approches pour mettre en évidence la présence de l'interaction DM, circonvenant la difficulté de mesurer la structure des parois dans les couches ultra-minces ferromagnétiques. Mesurer la nature, Bloch ou Néel, d'une paroi de domaine demeure cependant une manière très directe de mettre en évidence la présence de l'interaction DM, et constitue une preuve indiscutable. Il serait donc souhaitable de disposer d'une technique pour déterminer la structure des parois dans des films usuels. Nous avons, au chapitre précédent, illustré l'intérêt de disposer de mesures de champ quantitatives et résolues pour mesurer l'aimantation à saturation  $M_s$ . Une question légitime serait de se demander si une mesure quantitative du champ magnétique au-dessus d'une paroi de domaine ne pourrait pas quant à elle révéler sa structure interne.

## 4.2 Détermination de la nature des parois par une mesure de champ de fuite

Nous allons montrer dans cette partie qu'il est effectivement possible, à partir d'une simple mesure statique, mais quantitative, du champ de fuite au-dessus d'une paroi de domaine magnétique d'en déterminer la nature, Bloch ou Néel.

### 4.2.1 Principe : différence de champ de fuite entre parois de Bloch et de Néel

Une paroi de Bloch et une paroi de Néel ont pratiquement la même structure d'aimantation hors plan  $m_z(\mathbf{r})$ , et ne diffèrent que par leur structure au niveau de la paroi elle-même, c'est-à-dire par la composante planaire de l'aimantation. Comme nous l'avons vu au chapitre 1, la paroi de Bloch ne présente pas de charges magnétiques liées à l'aimantation planaire, ce qui la rend plus stable du point de vue magnétostatique. Dans le cas de la paroi de Néel, ceci est différent, puisque l'aimantation planaire perpendiculaire au plan de la paroi se traduit par la présence de charges magnétiques, de part et d'autre de la paroi. Ces charges sont à l'origine d'un champ démagnétisant supplémentaire et donc d'un surcoût en terme d'énergie magnétostatique. Par ailleurs, ce champ démagnétisant n'est pas confiné dans le matériau et on peut attendre une **différence mesurable entre le champ de fuite d'une paroi de Bloch et de celui d'une paroi de Néel**.

Nous avons en conséquence cherché à mesurer le champ magnétique au plus près d'une paroi de domaine, pour détecter ou non la présence d'une petite déviation par rapport au champ de fuite d'une paroi de Bloch [cf. figure 4.7(d)]. Pour déterminer la nature de la paroi, nous désirons comparer cette mesure expérimentale du champ magnétique à une prédiction théorique, dans les cas de Bloch ou de Néel. Une telle prédiction requiert une connaissance de tous les paramètres de l'expérience, incluant l'aimantation à saturation  $M_s$  et la hauteur de vol du centre NV  $d$ . La procédure que nous avons suivie pour mesurer la structure des parois de domaine a donc été la suivante :

1. Calibration de l'expérience sur une piste magnétique, comme décrit au chapitre 3, dans le but de connaître  $M_s = I_s/t$  et  $d$ .
2. Mesure du champ de fuite d'une paroi de domaine dans une piste par microscopie NV. Nous utilisons notamment cette mesure pour déterminer le profil (angle) de la paroi dans la piste magnétique.

3. Simulation des cartographies expérimentales attendues dans les cas Bloch ou Néel. Ces simulations sont obtenues à partir d'un profil de paroi obtenu avec le logiciel OOMMF [190]. Pour converger vers un profil de paroi de Bloch ou de paroi de Néel, nous avons utilisé une version de OOMMF prenant en compte l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya, développée par S. Rohart (LPS, Université Paris-Saclay et CNRS). À partir des profils de parois, nous avons calculé le champ à une hauteur  $d$ , puis appliqué la réponse du centre NV (calcul du déplacement Zeeman), en suivant la procédure décrite en annexe A.
4. Comparaison au niveau du maximum du champ, entre les cartographies de champ de fuite expérimentales et simulées, sur des coupes perpendiculaires à la paroi.

L'approche la plus simple est donc de calculer, via une simulation micromagnétique incorporant ou non l'interaction DM (par exemple avec le logiciel OOMMF), les configurations stables d'aimantation pour les deux types de parois, puis d'en déduire le champ attendu, et enfin de le confronter aux mesures expérimentales.

Il est toutefois instructif de calculer analytiquement le champ de fuite au-dessus d'une paroi de domaine. Cela nous permettra de dégager les points clés de la méthode, d'en étudier la précision, et enfin de déterminer la meilleure stratégie expérimentale pour minimiser les incertitudes. Afin d'obtenir simplement des expressions analytiques, nous ferons plusieurs approximations. Nous insistons cependant sur le fait que ces approximations n'interviennent pas dans les simulations micromagnétiques que nous utilisons pour déterminer la nature des parois.

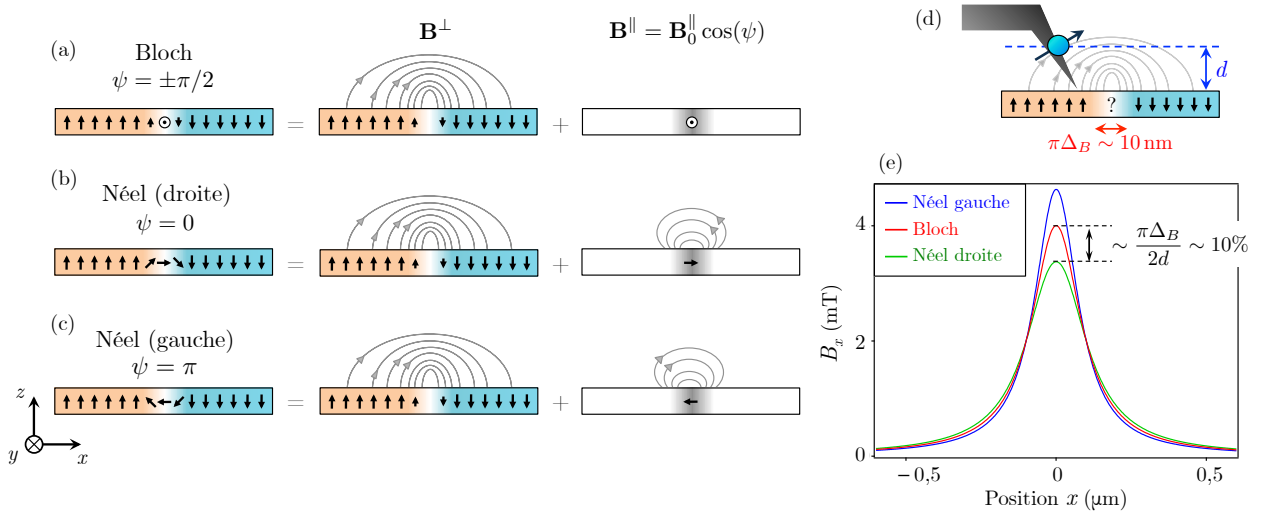


FIGURE 4.7 : **Principe de la mesure du type de paroi par le champ de fuite.** Une paroi de Bloch (a) et une paroi de Néel (b) et (c), ont quasiment la même composante perpendiculaire d'aimantation. Ces structures ne diffèrent que par l'aimantation planaire, au niveau de la paroi. Si on considère le champ de fuite, la composante  $\mathbf{B}^{\parallel}$ , due à l'aimantation planaire, fera la donc différence entre les trois situations. (d) Description du principe de la méthode. Une mesure quantitative du champ de fuite au-dessus de la paroi doit permettre de déterminer sa nature (e) Exemple de calcul du champ de fuite pour une couche ultra-mince typique ( $M_s = 1 \text{ MA/m}$  et  $t = 1 \text{ nm}$ ), à  $d = 100 \text{ nm}$  de la couche magnétique. L'écart relatif entre le champ d'une paroi de Bloch  $\mathbf{B}^{\perp}$ , et le champ d'une paroi de Néel  $\mathbf{B}_0^{\parallel} + \mathbf{B}^{\perp}$  est de l'ordre de 10%.



Tout d'abord, nous supposons que la paroi, parallèle à l'axe  $\hat{y}$ , est infinie suivant cette direction. Ensuite, nous nous restreindrons pour le calcul au cas où la hauteur de vol  $d$  est grande devant la largeur de la paroi  $\pi\Delta_B$ . Cette approximation est relativement raisonnable dans la pratique, puisque  $\pi\Delta_B = \sqrt{A_{\text{éch.}}/K_{\text{eff}}}$  est généralement de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, tandis que  $d$  est typiquement de l'ordre de 100 nm. Enfin, la composante de l'aimantation hors du plan  $M_z$  pour une paroi de Néel induite par l'interaction DM, sera considérée identique à celle d'une paroi de Bloch. En réalité, le champ dipolaire associé à la paroi de Néel induit une très légère déviation par rapport à l'aimantation hors plan d'une paroi de Bloch, loin de la paroi [10]. Cette correction est toutefois suffisamment petite pour que nous puissions l'omettre dans nos raisonnements. En conséquence, le champ magnétique  $\mathbf{B}^\perp$  issu de la composante  $M_z$  de l'aimantation sera considéré comme identique pour les deux parois. La différence entre le champ de fuite d'une paroi de Néel et celui d'une paroi de Bloch est donc uniquement le champ magnétique  $\mathbf{B}^\parallel$ , issu de la composante planaire  $\mathbf{M}_\parallel$  de l'aimantation. Ceci est illustré en figure 4.7.

Finalement, calculer le champ magnétique  $\mathbf{B}_{\text{paroi}} = \mathbf{B}^\perp + \mathbf{B}^\parallel$  produit au-dessus d'une paroi de domaine revient à donner les expressions des deux champs  $\mathbf{B}^\perp$  et  $\mathbf{B}^\parallel$ .

**Champ  $\mathbf{B}^\perp$  issu de la composante de l'aimantation hors du plan** Dans la limite où  $d \gg \pi\Delta_B$ , on pourra considérer que la transition de l'aimantation hors plan  $M_z = M_s \tanh(x/\Delta_B)$  au niveau de la paroi est en fait une transition abrupte, de type échelon, entre deux domaines aimantés uniformément. Cette situation revient à juxtaposer bout à bout deux bords de pistes uniformément aimantées dans des directions opposées. De cette façon, on est ramené au calcul d'un champ de bord présenté au chapitre précédent, simplement avec une amplitude doublée. Ceci donne, pour le champ  $\mathbf{B}^\perp$  créé par la composante hors du plan de la paroi

$$\begin{cases} B_x^\perp(x,z) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \left( \frac{z}{x^2 + z^2} \right) + O\left(\left(\frac{t}{z}\right)^3\right) \\ B_y^\perp(x,z) = 0 \\ B_z^\perp(x,z) = -\frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \left( \frac{x}{x^2 + z^2} \right) + O\left(\left(\frac{t}{z}\right)^3\right) \end{cases} . \quad (4.4)$$

**Champ  $\mathbf{B}^\parallel$  issu de la composante de l'aimantation contenue dans le plan** La composante planaire de l'aimantation est donnée dans le cas général par  $\mathbf{M}_\parallel = M_\parallel(x) [\cos(\psi) \mathbf{u}_x + \sin(\psi) \mathbf{u}_y]$ , où  $M_\parallel = M_s / \cosh(x/\Delta_B)$  [cf. chapitre 1]. Pour une paroi infinie suivant  $\hat{y}$ , la composante de l'aimantation dirigée par  $\mathbf{u}_y$  ne produit pas de champ. On s'intéresse donc simplement au champ créé par le moment magnétique  $M_\parallel(x) \cos(\psi) \mathbf{u}_x$ .

Toujours dans le cas  $d \gg \Delta_B$ , la manière la plus simple de modéliser ce moment de la paroi est de le considérer comme un dipôle linéique, de valeur  $\delta \mathbf{m} = \cos(\psi) [\pi \Delta_B t] M_s \mathbf{u}_x$ . Ceci donne à une distance  $d$  de la couche magnétique

$$\begin{cases} B_x^{\parallel}(x) \approx \cos(\psi) \frac{\mu_0 M_s}{2\pi} \pi \Delta_B t \frac{x^2 - d^2}{(x^2 + d^2)^2} \\ B_y^{\parallel}(x) = 0 \\ B_z^{\parallel}(x) \approx \cos(\psi) \frac{\mu_0 M_s}{2\pi} \pi \Delta_B t \frac{2xd}{(x^2 + d^2)^2} \end{cases} . \quad (4.5)$$

En amplitude, la composante  $\mathbf{B}^{\parallel}$  est maximale pour  $\cos(\psi) = \pm 1$ , c'est-à-dire pour une paroi de Néel. En définissant cette amplitude maximale comme  $\mathbf{B}_0^{\parallel}$ , on a finalement

$$\mathbf{B}_{\text{paroi}} = \mathbf{B}^{\perp} + \cos(\psi) \mathbf{B}_0^{\parallel} .$$

Dans le cas d'une paroi de Bloch,  $\mathbf{B}_{\text{paroi}} = \mathbf{B}^{\perp}$  puisque  $\cos(\psi) = 0$ . En effet, la composante planaire ne présente pas de charges magnétiques, et donc pas de champ démagnétisant [cf. figure 4.7(a)]. Cette expression souligne la similarité qui existe entre le champ de fuite d'une paroi de Bloch et celui d'un bord de piste, mesuré lors de l'étape de calibration.

Par ailleurs, la différence relative entre le maximum du champ  $\mathbf{B}^{\perp}$  produit par une paroi de Bloch, et celui  $\mathbf{B}^{\perp} \pm \mathbf{B}_0^{\parallel}$  d'une paroi de Néel, variera comme  $B_{0,\text{max}}^{\parallel} / B_{\text{max}}^{\perp} \sim \pi \Delta_B / 2d$ . Cette dépendance conforte l'intuition qu'une mesure au plus près de la paroi permettra de mieux différencier une paroi de Bloch d'une paroi de Néel. À 100 nm de la surface, cette différence atteint typiquement une dizaine de pourcents [figure 4.7(e)]. Dans les couches ultra-minces, où le champ de fuite d'une paroi de domaine magnétique vaut couramment quelques mT à cette distance, on s'attend donc à une différence de l'ordre de  $\sim 100 \mu\text{T}$  entre le champ d'une paroi de Néel et celui d'une paroi de Bloch. Cette différence est *a priori* très largement accessible par une mesure en microscopie à balayage de NV, sensible à  $\sim 10 \mu\text{T} / \sqrt{\text{Hz}}$  [cf. chapitre 2].

## 4.2.2 Précision de la mesure

Nous disposons désormais d'expressions analytiques pour calculer le champ d'une paroi de domaine, de Bloch ou de Néel, dans le référentiel associé à la paroi de domaine. Ces expressions analytiques présentent une double utilité.

Tout d'abord, elles nous permettent de choisir la meilleure approche, dans le but de réaliser la mesure la plus précise possible. D'autre part, ces expressions analytiques vont nous permettre d'estimer simplement la précision sur notre mesure. La discussion sur l'incertitude de la méthode est détaillée en annexe B. Dans cette partie, nous détaillerons simplement de manière qualitative les conclusions de cette discussion, et leurs conséquences sur la meilleure stratégie à adopter pour mesurer la nature, Bloch ou Néel, d'une paroi.

L'étape cruciale de la détermination de la nature d'une paroi par une mesure de champ de fuite réside dans l'étape de calibration. Plus exactement, la clé est la profonde similarité entre le champ magnétique produit par une paroi de Bloch  $\mathbf{B}^\perp$ , et le champ d'un bord de la couche magnétique  $\mathbf{B}^{bd}$ . Le champ  $\mathbf{B}^\perp$  d'une paroi de Bloch est en effet le double du champ magnétique au bord. La comparaison entre la mesure du champ au-dessus d'une paroi et au-dessus d'un bord donne donc directement la nature de la paroi, et sa chiralité si c'est une paroi de Néel. Pour cela, il faut que les champs de fuite de la paroi et du bord de couche, mesurés par microscopie NV, soient semblables. Comme le centre NV mesure seulement une projection du champ, il faut que cette projection soit la même dans les deux mesures. **Il faut donc mesurer le champ magnétique d'un bord parallèle à la paroi étudiée.**

Dans ces conditions, la simple discrimination entre une paroi de Bloch, et une paroi qui n'est pas une paroi de Bloch (paroi de Néel ou de Dzyaloshinskii) est limitée par la précision sur la mesure quantitative du champ, de l'ordre de  $\sim 10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  par point. Prenons l'exemple d'une mesure de 1 s par point. Si le champ  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}$ , mesuré au-dessus de la paroi, s'écarte de plus de  $\sim 10 \mu\text{T}$  du double du champ du bord, *i.e.*  $|\mathbf{B}_{\text{paroi}} - 2\mathbf{B}^{bd}| > 10 \mu\text{T}$ , alors on pourra avec certitude affirmer que l'on n'observe pas une paroi de Bloch.

Afin de réaliser la mesure la plus précise possible, il faut également que le champ mesuré soit maximal. Celui-ci est en effet comparé au bruit de la mesure de champ par microscopie NV. On a donc intérêt à mesurer la composante  $B_x$  du champ, c'est-à-dire, à rechercher un **centre NV orienté perpendiculairement à la paroi** ( $\theta = 90^\circ, \phi = 0^\circ$ ).

Nous pouvons enfin tirer une dernière remarque des formules analytiques du champ d'une paroi de domaine. Celle-ci concerne l'erreur sur la prédiction du champ associé aux parois de Néel. La différence de champ entre une paroi de Bloch et une paroi de Néel est en effet déterminée par la composante  $\mathbf{B}_0^\parallel$ , liée au dipôle linéique de la paroi  $\delta\mathbf{m} = \cos(\psi) [\pi\Delta_B t] M_s \mathbf{u}_x$  (cf. §4.2.1). Il apparaît donc que  $\mathbf{B}_0^\parallel$  dépend de  $\Delta_B = \sqrt{A_{\text{éch.}}/K_{\text{eff.}}}$ , or la constante d'échange  $A_{\text{éch.}}$  est très mal déterminée dans les couches ultra-minces, à une incertitude de l'ordre de 100%. De cette incertitude sur la largeur de la paroi, il vient une erreur de l'ordre de  $\sim 10\%$  sur les prédictions de champ pour la composante  $\mathbf{B}_0^\parallel$ . C'est la principale source d'erreur dans la prédiction du champ de fuite attendu au-dessus d'une paroi de Néel.

En conclusion de cette discussion, nous avons dégagé deux aspects importants de la mesure :

- l'étape de calibration de l'expérience doit être réalisée sur une piste parallèle à la paroi ;
- le centre NV doit être aligné perpendiculairement à la paroi.

Par ailleurs, il sera possible de décider très précisément de la présence ou non d'une paroi de Bloch, tandis que l'estimation du champ prédit pour une paroi de Néel sera beaucoup plus incertaine, du fait de la mauvaise connaissance de la constante d'échange  $A_{\text{éch.}}$  et donc de la largeur des parois. On peut remarquer au passage que, si l'on était par avance sûr de la présence de parois de Néel, on aurait alors une nouvelle méthode pour mesurer la constante d'échange.

### 4.2.3 Preuve de principe de la méthode

Nous allons dans cette partie exposer notre méthode de mesure de la structure des parois de domaines sur l'exemple d'un échantillon de Ta|CoFeB(1)|MgO tels que ceux que nous avons étudiés dans les chapitres 2 et 3.

**Échantillon** L'échantillon que nous avons étudié tout d'abord est la même structure de Ta|CoFeB(1)|MgO que celle dans laquelle nous avons observé des sauts de Barkhausen au chapitre 2. Nous avons rappelé en figure 4.8(a) le design de cet échantillon qui nous avait été fourni par le groupe NOMADE de l'IEF (Université d'Orsay). L'échantillon est en réalité une croix de Hall, et présente ainsi deux pistes perpendiculaires, ce qui est la géométrie idéale pour réaliser l'étape de calibration de l'expérience puis étudier une paroi, comme discuté au paragraphe précédent (§4.2.2). La paroi a ainsi été nucléée dans la première branche de la croix, près de l'antenne en or, tandis que la calibration a été réalisée au niveau de la seconde branche de la croix de Hall [cf. figure 4.8].

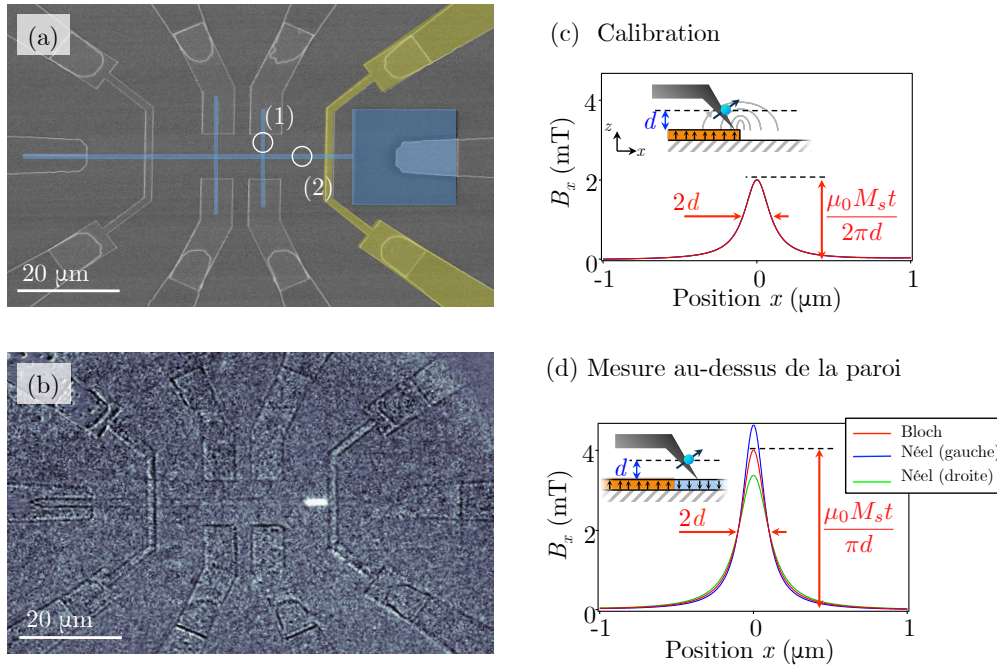


FIGURE 4.8 : **Échantillon de Ta|CoFeB|MgO.** (a) Image par microscopie électronique à balayage de l'échantillon utilisé, en fausses couleurs. La couche magnétique est représentée en bleu, tandis que l'antenne en or utilisée pour exciter la résonance de spin du centre NV est colorisée en jaune. Les deux cercles blancs (1) et (2) indiquent respectivement la région où nous avons réalisé l'étape de calibration du microscope NV, et la région où se situe la paroi de domaine. (b) Image du même échantillon en microscopie Kerr. La piste magnétique saturée a été localement retournée, par le champ d'Orsted d'une impulsion de courant circulant dans l'antenne en or. Ce domaine magnétique apparaît en blanc dans l'image. (c) et (d) Rappelent le principe des mesures de calibration, et de mesure du champ au dessus de la paroi, permettant de déterminer la nature de la paroi. L'idée étant que le champ d'une paroi de Bloch est deux fois supérieur à celui du bord d'une piste.

**Calibration et mesure** Afin d’obtenir une précision de mesure optimale, nous avons essayé d’accrocher un centre NV d’orientation optimale, c’est-à-dire avec  $\theta \sim 90^\circ$  et  $\phi \sim 0^\circ$ , pour une paroi normale à  $\hat{x}$  (cf. 4.2.2). Pour cela, nous répétons la procédure d’accrochage décrite au chapitre 2, et mesurons rapidement l’orientation du centre NV. Si celle-ci ne convient pas, on le décroche en balayant la pointe d’AFM en mode contact jusqu’à perdre le nano-diamant, et on l’accroche de nouveau, ce jusqu’à être satisfait de l’orientation. Dans l’expérience sur l’échantillon de Ta|CoFeB|MgO, présentée en figure 4.9, nous avons ainsi utilisé un centre NV d’orientation  $(\theta, \phi) = (62^\circ, -25^\circ) \pm 2^\circ$ . Une fois le diamant accroché avec une orientation satisfaisante, nous pouvons réaliser la mesure du type de paroi de domaine, en commençant par la calibration de l’expérience.

L’étape de calibration, consistant à mesurer le champ de fuite des bords d’une des pistes, a été réalisée dans la seconde branche de la croix de Hall, dans la région indiquée par la marque (1) en figure 4.8(a). Le résultat de la mesure sur une coupe, ainsi que l’ajustement correspondant est présenté en figure 4.9(a). En suivant la même procédure que décrite au chapitre 3, nous avons mesuré  $I_s = 97,8 \pm 1,9 \mu_B/\text{nm}^2$  et  $d = 123 \pm 3 \text{ nm}$ .

Une fois l’expérience calibrée, nous avons mesuré le champ au-dessus de la paroi de domaine repérée en figure 4.8(b) sur l’image de microscopie Kerr. La cartographie du déplacement Zeeman du centre NV, obtenue en ajustant point après point les spectres d’ODMR du centre NV, est présentée en figure 4.9(c). On observe bien le champ au-dessus de la paroi, beaucoup plus intense que sur les bords en raison de l’orientation du centre NV. En particulier, de la même façon que nous l’avons fait au chapitre 2 pour étudier les sites de piégeage, il est possible d’ajuster le profil de la paroi et de remonter à son orientation dans la piste, ce qui est pris en compte dans les prédictions de champ et l’évaluation des incertitudes.

**Simulations** Munis de toutes les observations précédentes, calibration et mesure du profil de la paroi, il nous a été possible de simuler le champ attendu pour celle-ci, dans différentes configurations (Bloch ou Néel). Afin de ne faire aucune approximation quant au calcul du champ, nous avons utilisé le logiciel de calcul micromagnétique OOMMF [190], modifié par S. Rohart (LPS, Orsay) pour inclure ou non la contribution de l’interaction DM (et ainsi converger vers une paroi de Bloch ou une paroi de Néel, de chiralité choisie). Nous avons utilisé pour le calcul micromagnétique une valeur de  $A_{\text{éch.}} = 20 \text{ pJ/m}$  pour la constante d’échange, et de  $K = 5,9 \cdot 10^5 \text{ J/m}^3$  (déduite de la mesure du champ d’anisotropie  $\mu_0 H_{K_{\text{eff}}} = 107 \text{ mT}$  [151]) pour la constante d’anisotropie. Ceci correspond donc à une largeur de paroi de  $\Delta_B \approx 20 \text{ nm}$ . Le calcul a été effectué pour une piste d’épaisseur  $t = 1 \text{ nm}$ , et de largeur  $l_{\text{piste}} = 1500 \text{ nm}$ , pour un maillage de  $2,5 \times 2,5 \times 1 \text{ nm}^3$ . En partant des profils d’aimantation ainsi calculés, nous avons calculé le champ magnétique de fuite à une distance  $d$  de la couche magnétique, par une approche Coulombienne. Enfin, nous avons appliqué la réponse du centre NV au champ magnétique, sur chaque point de l’image au-dessus de la paroi. L’ensemble de cette procédure de calcul des cartographies de déplacement Zeeman du centre NV, à partir de l’aimantation, est détaillée en annexe A.

Finalement, nous avons obtenu quatre simulations d’images du déplacement Zeeman du centre NV, pour les quatre situations suivantes : Néel droite ( $\psi = 0$ ), Bloch droit ( $\psi = \pi/2$ ), Néel gauche ( $\psi = \pi$ ), et Bloch gauche ( $\psi = 3\pi/2$ ). Ces quatre simulations sont présentées en figure 4.9(e).

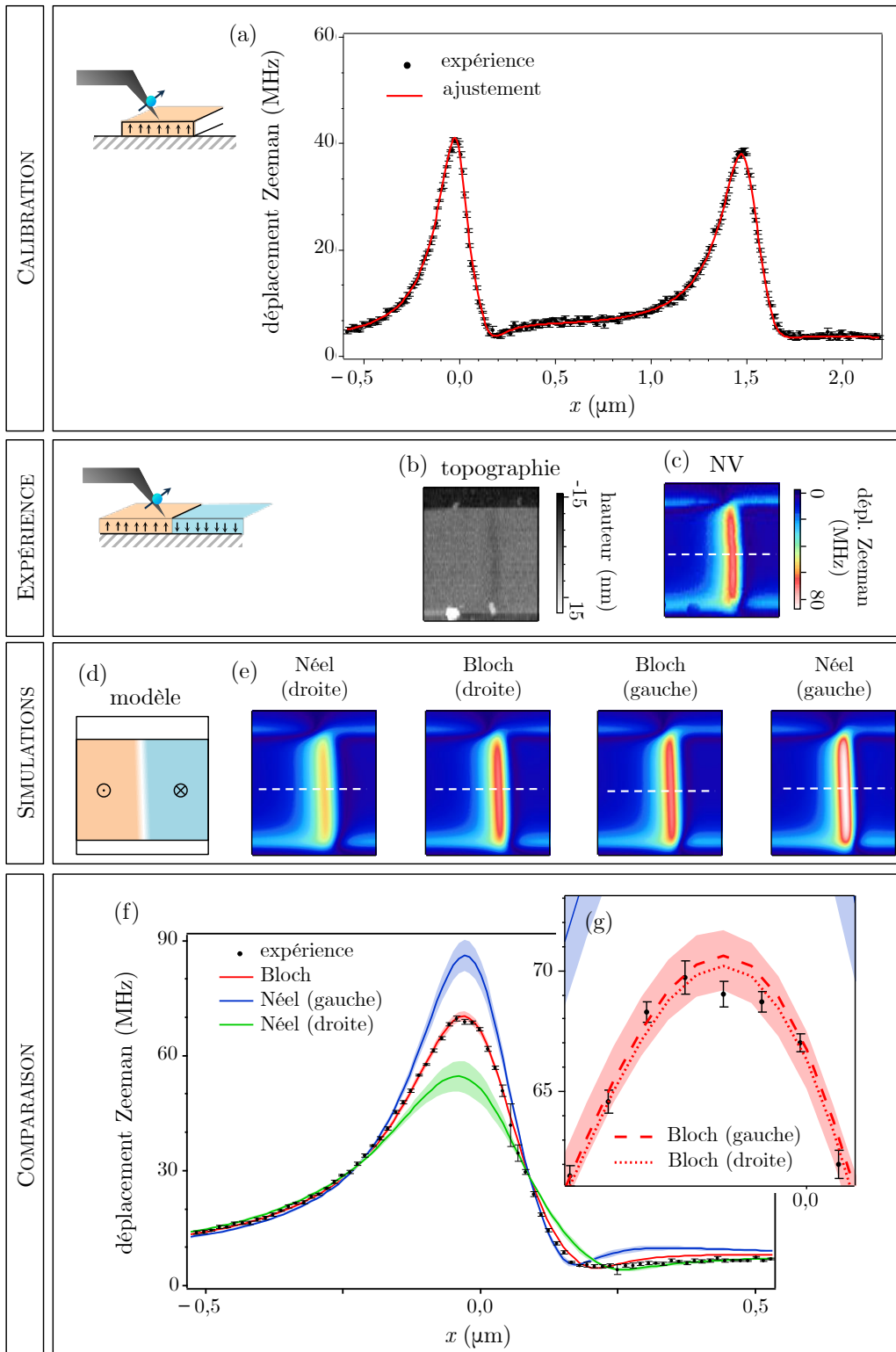


FIGURE 4.9 : Mesures de parois de Bloch dans Ta|CoFeB(1)|MgO. (a) Calibration de l'expérience, sur une piste uniformément aimantée parallèle à l'orientation de la paroi étudiée. On trouve pour cette mesure  $I_s = 97,8 \pm 1,9 \mu_B/\text{nm}^2$  et  $d = 123 \pm 3 \text{ nm}$ . (b) Topographie mesurée par AFM et (c) cartographie du déplacement Zeeman du centre NV au dessus d'une paroi dans une piste de Ta|CoFeB(1)|MgO, enregistrées simultanément par microscopie à balayage de centre NV. (d) Modèle utilisé pour calculer le déplacement Zeeman avec différentes structures de parois. La paroi forme un angle de  $\phi_{\text{paroi}} = 2^\circ$  avec la perpendiculaire à la piste. (e) Résultat des simulations de cartographies du déplacement Zeeman pour différents profils de parois obtenus à partir du logiciel OOMMF, avec ou sans interaction DM. (f) et (g) Comparaison entre une coupe, perpendiculaire à la paroi, des cartographies simulées en (e) et expérimentale (c), suivant la ligne pointillée blanche sur ces images. Les nappes colorées correspondent à l'incertitude estimée théoriquement. (g) Agrandissement autour du maximum du champ. La conclusion de cette expérience est que les parois dans Ta|CoFeB(1)|MgO sont de type Bloch.

**Résultat de la comparaison.** Nous avons comparé la mesure expérimentale du champ au-dessus de la paroi aux simulations, sur des coupes, indiquées par les pointillés blancs en figures 4.9(c) et (e). Le résultat de ces coupes est présenté en figure 4.9(f). Les lignes colorées correspondent aux prédictions de champ, dans différentes configurations (Néel ou Bloch). Les incertitudes estimées pour le champ prédit sont représentées par les nappes, de part et d'autre du champ simulé. Le calcul de ces incertitudes sur les prédictions de champ est décrit dans l'annexe B. Notons que ces marges n'ont de signification qu'autour du maximum du champ, en raison de la manière dont nous les avons estimées, tandis qu'elles sont sous-estimées pour les faibles champs. Par ailleurs, l'erreur est importante pour les parois de Néel, car elle est liée à la largeur de la paroi, et ce paramètre est assez mal connu (à  $\sim 10\%$ ). Le champ prédit pour une paroi de Bloch, en revanche, est quasiment exact, puisqu'il correspond directement au double de la mesure de calibration.

Au vu de notre précision, la conclusion est indiscutable. La piste de Ta|CoFeB(1)|MgO|Ta étudiée supporte des parois de Bloch. Par contre, la précision de notre mesure ne permet pas de distinguer ici entre les deux chiralités possibles pour la paroi de Bloch. On peut estimer une borne supérieure pour la force de l'interaction DM, à savoir  $|D_{DM}| < 0,01 \text{ mJ/m}^2$ . Ce résultat, bien qu'un peu décevant, ne contredit pas les prédictions de l'article de Thiaville et collègues de 2012 [10], qui porte quant à lui sur Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub>. Disposant d'une méthode pour décider directement de la présence de l'interaction DM, par une mesure statique et non-invasive de champ magnétique, il est possible de changer d'échantillon sans contrainte particulière.

Il a donc été naturel d'étudier d'autres échantillons, à commencer par Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub>, au cœur du débat.

## 4.3 Preuve de la présence de l'interaction DM dans les couches ultra-minces

### 4.3.1 Parois de Néel dans Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub>

Pour étudier les parois dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub>, nous avons suivi pour la mesure de la nature de la paroi la même procédure que celle décrite ci-avant pour l'échantillon de Ta|CoFeB|MgO.

**Échantillon** Le matériau, synthétisé à Grenoble par le groupe de G. Gaudin, est identique aux échantillons des mesures des deux articles de Miron et collaborateurs [11, 34]. Il consiste en une couche de Pt(3)|Co(0,6)|Al(1,6) déposée sur un substrat de Silicium oxydé par pulvérisation. La couche d'aluminium a ensuite été oxydée par un plasma d'oxygène, pour obtenir une couche uniforme d'alumine AlO<sub>x</sub>(2), favorisant notamment l'anisotropie perpendiculaire. Celle-ci correspond dans cet échantillon à un champ effectif  $\mu_0 H_{K_{\text{eff}}} = 920 \text{ mT}$ , ce qui, pour des valeurs de la constante d'échange estimées être dans la gamme  $A = 10 - 30 \text{ pJ/m}$ , résulte en une longueur de Bloch de  $\Delta_B = 6.0 \pm 1,6 \text{ nm}$  [34]. Cette largeur est environ trois fois plus faible que dans les couches de CoFeB|MgO. Comme l'épaisseur nominale  $t = 0,6 \text{ nm}$  est presque deux fois plus faible que dans les échantillons de CoFeB, on s'attend à avoir une différence entre le champ attendu pour une paroi de Néel et pour une paroi de Bloch environ 6 fois moins importante. La distinction entre les parois demeure donc réalisable, malgré cet écart plus faible.

Le film a ensuite été gravé, après définition d'un masque par lithographie électronique puis gravure ionique. Nous avons ainsi obtenu une structure comportant des pistes pouvant accueillir les parois, et d'autres, perpendiculaires, pour la calibration. Enfin, une seconde étape de lithographie a permis de déposer une antenne en or pour exciter la résonance de spin du centre NV. Des domaines magnétiques ont été nucléés dans cet échantillon par S. Rohart au Laboratoire de Physique des Solides (Orsay) sous microscopie Kerr, par l'application d'une impulsion de champ magnétique après saturation de l'échantillon. Nous avons ainsi pu imager trois parois de domaine dans les pistes de largeur  $l = 470 \pm 20$  nm, perpendiculaires à l'antenne d'or et aux pistes de calibration.

**Calibration** Comme pour l'expérience sur Ta|CoFeB|MgO, la mesure de parois nécessite une calibration des paramètres  $I_s$  et  $d$  de la mesure, par la méthode détaillée au chapitre 3. [34]

Dans un échantillon présentant une forte interaction de Dzyaloshinskii-Moriya, l'aimantation sur les bords du matériau est censée s'incliner un peu, comme discuté dans la référence [180]. Cette inclinaison modifie légèrement le champ aux bords des pistes, pour les mêmes raisons que le champ de la paroi de Néel diffère de celui de la paroi de Bloch. Cette différence peut en principe fausser un peu le résultat des mesures de calibration. Nous avons donc réalisé deux fois l'ajustement des coupes de champ magnétique au-dessus d'une piste afin d'extraire  $I_s$  et  $d$ , une fois en considérant une très forte valeur de  $D_{DM} = -2,5$  mJ/m<sup>2</sup>, et une seconde fois en supposant  $D_{DM} = 0$  mJ/m<sup>2</sup>. Un exemple de coupe de calibration au-dessus d'une piste de largeur  $l_c = 980 \pm 20$  nm et de hauteur  $\delta d = 25 \pm 3$  nm est présenté en figure 4.10(a). Le résultat des procédures d'ajustement nous a permis de mesurer  $I_s = 72,4 \pm 1,9 \mu_B$  et  $d = 121 \pm 3,4$  nm pour  $D_{DM} = -2,5$  mJ/m<sup>2</sup>, et  $I_s = 72,2 \pm 1,9 \mu_B$  et  $d = 119 \pm 3,4$  nm, pour  $D = 0$  mJ/m<sup>2</sup>. La différence entre les ajustements est donc inférieure aux incertitudes sur les paramètres  $I_s$  et  $d$ , et ne jouera pas sur la détermination de la nature des parois. D'autre part, la valeur que nous avons mesuré pour  $M_s = I_s/t = 1,12 \pm 0,03$  MA/m est en bon accord avec les valeurs attendues pour cet échantillon [34].

**Détermination de la nature des parois** Une fois l'expérience calibrée, nous avons mesuré le champ au-dessus de trois parois dans les pistes de 500 nm, avec le même centre NV, d'orientation ( $\theta = 87^\circ \pm 2^\circ$ ,  $\phi = 23^\circ \pm 2^\circ$ ). Le résultat des mesures est présenté en figure 4.10(b), (c) et (d). Des profils de parois, nous avons extrait le profil moyen de la paroi. Nous avons ensuite calculé l'aimantation à partir de simulations micromagnétiques, avec le logiciel OOMMF, en utilisant comme paramètres une valeur de  $A_{\text{éch.}} = 18$  pJ/m pour la constante d'échange, et de  $K = 1,3 \cdot 10^6$  J/m<sup>3</sup> (déduite de la mesure du champ d'anisotropie  $\mu_0 H_{K_{\text{eff}}} = 920$  mT [34]) pour la constante d'anisotropie, soit une largeur de paroi de  $\Delta_B \approx 6$  nm. La simulation a été réalisée pour une piste d'épaisseur  $t = 0,6$  nm et de largeur  $l_{\text{piste}} = 470$  nm, avec un maillage de  $2,5 \times 2,5 \times 1$  nm<sup>3</sup>. S'appuyant sur ces calculs d'aimantation, nous avons calculé le champ magnétique attendu dans les configurations de Bloch ou de Néel. Enfin, nous avons appliqué la réponse du centre NV, et comparé les mesures expérimentales au champ calculé, sur des coupes au centre de la piste. Le résultat de cette comparaison est présenté en figure 4.10(b), (c) et (d).

L'expérience démontre sans ambiguïté la présence de parois de Néel, toutes de même chiralité (gauche). **La présence de parois de Néel homochirales nous permet d'affirmer que cet échantillon présente bien une interaction de Dzyaloshinskii-Moriya dont la force est supérieure à celle de la transition**



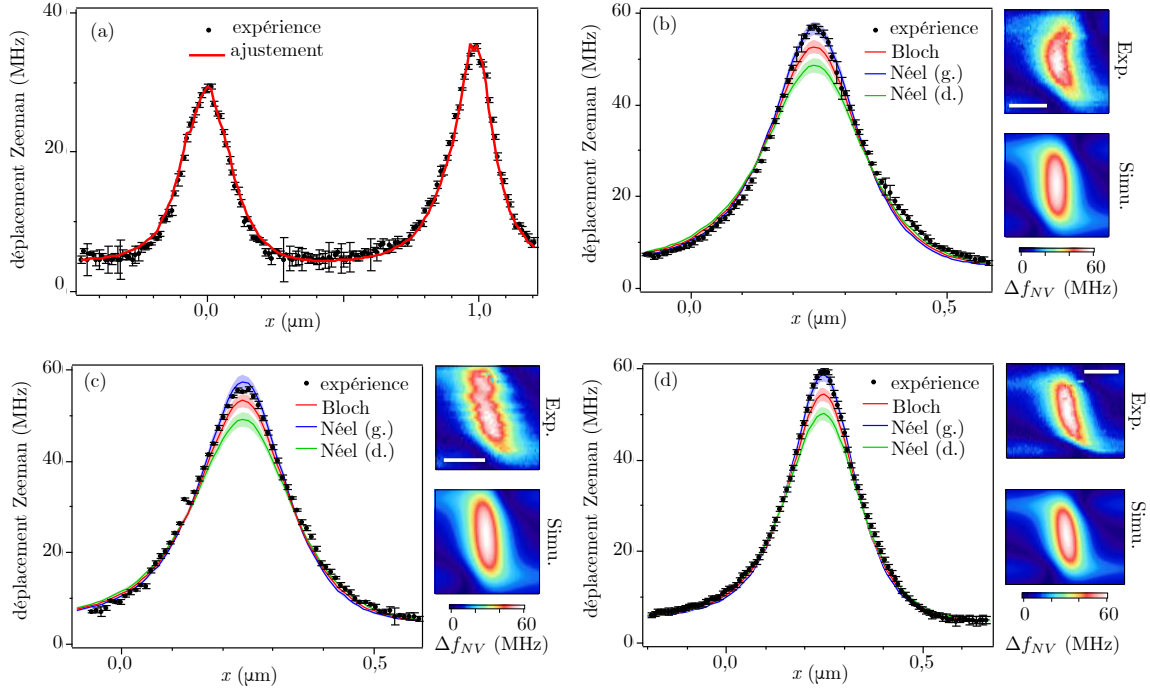


FIGURE 4.10 : **Parois de Néel dans Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub>**. (a) Calibration sur une piste de 1 μm. (b), (c) et (d) correspondent à la comparaison, pour trois parois différentes contenues dans des pistes de ~ 500 nm, entre coupes du déplacement Zeeman du centre NV, et des prédictions de champ obtenues avec OOMMF (version du code prenant en compte DM [180]). Les images simulées, dans les images à droite des courbes correspondent au cas Néel gauche. De même que pour Ta|Co<sub>20</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>(1)|MgO|Ta, les nappes correspondent à l'erreur estimée sur nos prédictions théoriques. Dans les trois cas, la conclusion est à ces erreurs près, la même : la paroi est une paroi de Néel de chiralité gauche, correspondant à une constante  $D$  négative, plus grande que la valeur critique  $|D| > D_{c,1} \approx 0,1 \text{ mJ/m}^2$ . (barres d'échelle : 250 nm)

**Bloch** → **Néel**, *i.e.*  $|D_{DM}| > 0,1 \text{ mJ/m}^2$ .

Depuis cette expérience, deux autres méthodes ont confirmé la présence de l'interaction DM dans Pt|Co|AlO<sub>x</sub>. En 2014, des mesures de S. Pizzini et collaborateurs [45] révélant une asymétrie dans la nucléation sous champ de domaines à partir des bords d'un film, s'expliquent uniquement par des prédictions incluant l'interaction DM, et avec la même chiralité que pour les parois que nous avons observé. La force de l'interaction DM  $D_{DM} = -2,2 \text{ mJ/m}^2$  déduite de leurs résultats est en accord avec nos mesures ainsi qu'avec les prédictions théoriques de l'article de Martinez [13] et collègues.

Enfin, en 2015, M. Belmeguenai *et al.* [191] ont mis en évidence la propagation asymétrique des ondes de spin dans des couches de Pt|Co|AlO<sub>x</sub> de différentes épaisseurs, par spectroscopie de diffusion Brillouin de la lumière (BLS). Cette étude prouve l'origine interfaciale de l'interaction DM et est en accord avec notre détermination du signe de  $D_{DM}$ , correspondant à une paroi de Néel de chiralité gauche. La valeur mesurée par Belmeguenai *et al.* pour Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub>, de  $D_{DM} = -2,2 \text{ mJ/m}^2$ , est la même que celle déduite de l'étude de Pizzini *et al.*

S'il a été mis en évidence la présence d'une interaction DM conséquente dans les couches de PtCoAlOx, l'origine physique de l'interaction DM demeure mal comprise. Cette interaction survenant aux interfaces, il est intéressant d'étudier ce qui se produit lorsque l'on change l'un des matériaux composant une interface. Dans ce but, le groupe de M. Hayashi au NIMS (Tsukuba, Japon) a publié en 2014 une étude, regroupant des mesures sous courant dans des couches de CoFeB|MgO déposées sur différents substrats métalliques. Dans cet article de Torrejon et collègues [192], il est fait mention d'une interaction DM suffisamment forte pour induire une transition de Bloch vers Néel, ainsi qu'une possibilité de contrôler l'interaction DM en dopant le substrat pour modifier son électronégativité. Nous avons donc essayé de reproduire ces mesures indirectes (sous courant) par notre technique de mesure statique du type de parois.

### 4.3.2 Remplacement du substrat : X|CoFeB(1)|MgO

**Échantillons** Nous avons reçu plusieurs échantillons du groupe de M. Hayashi, qui avait publié les résultats de la référence [192], à savoir TaN(1) et TaN(4), W(1), et Hf(1) et Hf(4). L'ensemble des échantillons a été caractérisé avant envoi par VSM (*Vibrating Sample Magnetometry*). Tous ces échantillons ont de même ensuite été gravés à l'IEF (Orsay) par K. García, par définition d'un masque en lithographie électronique, puis gravure ionique. Nous avons ainsi obtenu des pistes magnétiques pour accueillir les parois, et d'autres, perpendiculaires, pour réaliser la calibration de l'instrument. Une seconde étape de lithographie a permis de déposer une antenne en or, pour exciter la résonance du centre NV. Les parois ont été nucléées près de la piste magnétique en envoyant une impulsion de courant dans l'antenne, à l'IEF, par L. Herrera-Diez et R. Soucaille.

Suite à des problèmes de gravure, nous n'avons pas obtenu de résultat sur les échantillons de Hf|CoFeB|MgO. Nous allons donc présenter des résultats seulement dans les autres échantillons.

#### 4.3.2.1 TaN|CoFeB(1)|MgO

Les deux premiers échantillons étudiés sont des films de CoFeB déposés sur un substrat de tantale, dopé avec une petite fraction d'atomes d'azote (0,7%). L'épaisseur du substrat est respectivement de 1 et 4 nm dans chaque échantillon. Dans l'article de Torrejon et collègues [192], l'épaisseur du substrat semble jouer un rôle important sur l'interaction DM, de manière relativement surprenante étant donné l'origine interfaciale présumée pour l'interaction. Les valeurs reportées sont en effet de  $D_{DM} = 0.05 \text{ mJ/m}^2$  pour TaN(1), et de  $D_{DM} = 0.2 \text{ mJ/m}^2$  pour TaN(4).

Nous avons étudié les deux échantillons avec le même centre NV, et les résultats sont présentés en figure 4.11 pour l'échantillon de TaN(1)|CoFeB, et en figure 4.12 pour l'échantillon de TaN(4)|CoFeB. L'orientation du centre NV que nous avons utilisé est de  $(\theta = 117^\circ \pm 2^\circ, \phi = 12^\circ \pm 2^\circ)$ .

**TaN(1)|CoFeB(1)|MgO** L'étape de calibration, en figure 4.11(a), a été effectuée sur une piste de largeur  $l = 880 \pm 50 \text{ nm}$ , et de hauteur  $\delta d = 8 \pm 3 \text{ nm}$ . Nous avons ainsi mesuré  $I_s = 112,1 \pm 5,4 \mu_B/\text{nm}^2$  et  $d = 80 \pm 5 \text{ nm}$ . La valeur de  $M_s = I_s/t = 1,04 \pm 0,05 \text{ MA/m}$  est notamment en assez bon accord, avec la mesure de  $M_s = 1,23 \pm 0,10 \text{ MA/m}$  obtenue par VSM, quoiqu'un peu plus faible.

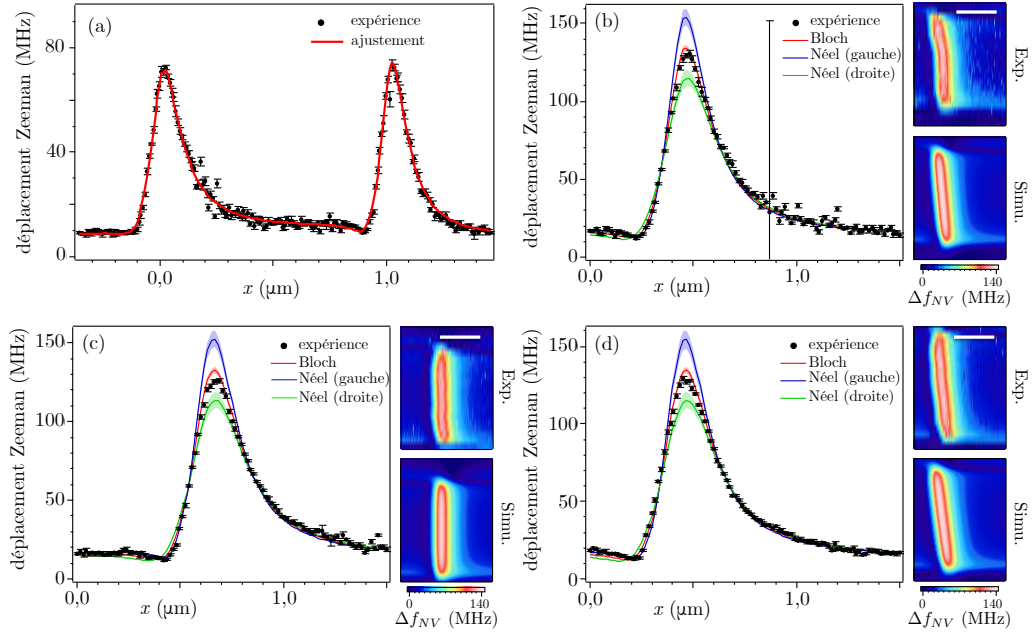


FIGURE 4.11 : Légère déviation vers Néel droite dans TaN(1)|CoFeB(1)|MgO. (a) Coupe de calibration. (b), (c) et (d) Mesure du déplacement Zeeman au-dessus de trois parois différentes. Les barres d'échelle correspondent à 500 nm. Les simulations sont effectuées avec des profils de parois de Bloch, calculés analytiquement. Les trois coupes indiquent une légère déviation vers une paroi de Néel droite.

Une fois la calibration effectuée, nous avons mesuré trois parois différentes dans l'échantillon. Ces mesures, présentées en figure 4.11(b), (c) et (d), ont permis d'ajuster le profil des parois. La mesure de l'anisotropie effective par VSM,  $K_{\text{eff}} = 3,6 \cdot 10^5 \text{ J/m}^3$  nous a permis d'estimer la largeur des parois à  $\Delta_B = 8 \pm 2 \text{ nm}$ . S'appuyant sur ces mesures, nous avons calculé le champ produit théoriquement par des parois de Bloch ou de Néel. Cependant, à la différence des mesures présentées plus tôt, nous avons pour ce faire simplement utilisé le calcul analytique du champ d'une paroi. Cette approximation se justifie au regard du très bon accord entre calcul analytique et calcul micromagnétique, détaillé en annexe B.

Le résultat des prédictions de champ, auxquelles nous avons appliqué la réponse du centre NV, est présenté en figure 4.11(b), (c) et (d). La comparaison aux données expérimentales permet d'affirmer que l'échantillon supporte des parois de Bloch, avec une probable légère déviation vers une paroi de type Néel droite. Au vu de nos incertitudes, ceci correspond à une valeur de  $D_{\text{DM}} = 0.057 \pm 0.019 \text{ mJ/m}^2$ , en bon accord avec la valeur  $D_{\text{DM}} = 0.05 \text{ mJ/m}^2$ , du groupe de Tsukuba [192].

**TaN(4)|CoFeB(1)|MgO** Nous avons ensuite étudié l'échantillon déposé sur un substrat de TaN(4). L'étape de calibration a été réalisée sur une piste de largeur  $l = 1010 \pm 50 \text{ nm}$ , et de hauteur  $\delta d = 8,5 \pm 5 \text{ nm}$ . Le résultat est présenté en figure 4.12(a). Nous avons ainsi mesuré  $I_s = 86,3 \pm 8,6 \mu\text{B/nm}^2$  et  $d = 61 \pm 6 \text{ nm}$ . La valeur de  $M_s = I_s/t = 0,80 \pm 0,08 \text{ MA/m}$  est, comme pour l'échantillon de TaN(1), un peu plus faible que la mesure de  $M_s = 1,04 \pm 0,10 \text{ MA/m}$  obtenue par VSM. Il est par ailleurs notable que la distance du centre NV à la

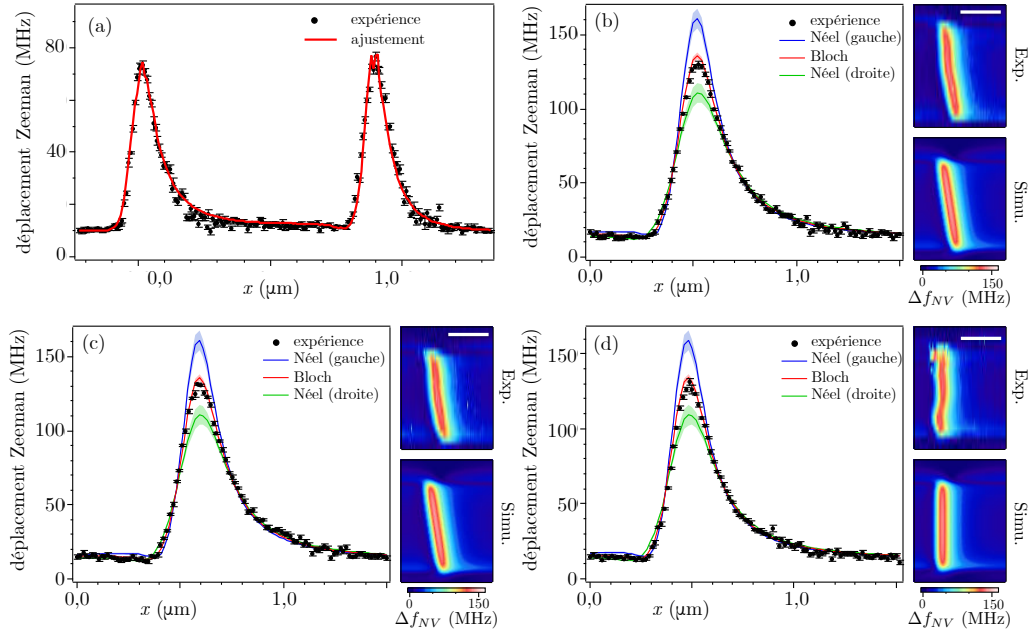


FIGURE 4.12 : **Légère déviation vers Néel droite dans TaN(4)|CoFeB(1)|MgO.** (a) Coupe de calibration. (b), (c) et (d) Mesure du déplacement Zeeman au-dessus de trois parois différentes. Les barres d'échelle correspondent à 500 nm. Les simulations sont ici également effectuées avec des profils de parois de Bloch, calculés analytiquement. Les trois coupes indiquent, comme pour TaN(1), une légère déviation vers une paroi de Néel droite.

couche magnétique  $d$  a changé entre les deux expériences. Cette diminution de la hauteur de vol peut s'expliquer par plusieurs raisons. Outre l'erreur sur notre estimation, nous mesurons la distance à la couche magnétique, qui n'est pas nécessairement aussi profonde dans les deux échantillons. Enfin, la raison la plus probable est un changement de hauteur de vol entre les deux expériences, du fait du changement d'échantillon. Les paramètres utilisés pour la mesure d'AFM ne sont ainsi pas nécessairement les mêmes pour les deux mesures, ce qui peut expliquer la différence.

Une fois l'expérience calibrée, nous avons mesuré le champ magnétique au-dessus de trois parois. Nous avons procédé pour les prédictions du champ de fuite de la même manière que pour l'échantillon de TaN(1). La largeur de paroi utilisée a également été  $\Delta_B = 8 \pm 2$  nm, dérivée de la valeur de  $K_{\text{eff}} = 3,5 \cdot 10^5$  J/m<sup>3</sup> obtenue en VSM. Le résultat des mesures du champ de fuite par microscopie NV, et des simulations est présenté pour les trois parois en figure 4.12(b), (c) et (d).

La comparaison sur des coupes entre prédictions de champ et mesure expérimentale est cette fois très différente des conclusions de l'étude du groupe de Tsukuba [192]. Au lieu de  $D_{\text{DM}} = 0.2$  mJ/m<sup>2</sup>, ce qui correspondrait à une pure paroi de Néel, nous avons mesuré une légère déviation du cas de la paroi de Bloch, tout comme pour l'échantillon précédent, soit une valeur de  $D_{\text{DM}} = 0.023 \pm 0,011$  mJ/m<sup>2</sup>. Bien que la chiralité de la paroi (vers Néel droite) soit identique pour les deux conclusions, notre résultat s'écarte beaucoup de la mesure de  $D_{\text{DM}}$  obtenue par propagation des parois sous courant. En particulier, notre mesure indique une **valeur**

de  $D_{DM}$  similaire, pour deux épaisseurs différentes d'un même substrat de TaN. Ce résultat est attendu, en raison de l'origine interfaciale de l'interaction DM. L'explication de la différence entre les deux estimations de  $D_{DM}$  obtenues avec des courants pourrait être une mauvaise estimation du courant de spin induit par SHE, causée par le changement d'épaisseur du substrat. Cette expérience souligne l'intérêt de disposer d'une mesure statique et directe de la structure de la paroi, qui ne soit pas tributaire d'une modélisation comme dans le cas des études dynamiques.

#### 4.3.2.2 W|CoFeB(1)|MgO

Le dernier échantillon que nous avons étudié est un échantillon de W(1)|CoFeB. Nous avons procédé pour la mesure de cet échantillon de la même manière que pour les deux échantillons précédents. Le centre NV utilisé avait pour orientation ( $\theta = 110^\circ \pm 2^\circ, \phi = 12^\circ \pm 2^\circ$ ). La calibration de l'expérience (en figure 4.13(a)) a été effectuée sur une piste de largeur  $l = 1000 \pm 50$  nm et de hauteur  $\delta d = 3,3 \pm 2$  nm. Nous avons obtenu des valeurs de  $d = 114 \pm 10$  nm et  $I_s = 88,4 \pm 10,7 \mu_B/\text{nm}^2$ , soit  $M_s = I_s/t = 0,82 \pm 0,10$  MA/m. Nous avons ensuite mesuré le champ de trois parois différentes. La constante d'anisotropie, mesurée par VSM était pour cet échantillon de  $K_{\text{eff}} = 2,1 \cdot 10^5$  J/m<sup>3</sup>, ce qui correspond à une largeur de paroi de  $\Delta_B = 10 \pm 2,5$  nm. Munis de tous ces paramètres, nous avons simulé les cartographies attendues pour chaque paroi. Ces cartographies du déplacement Zeeman du centre NV, au-dessus des parois, sont présentées en figure 4.13(b), (c) et (d).

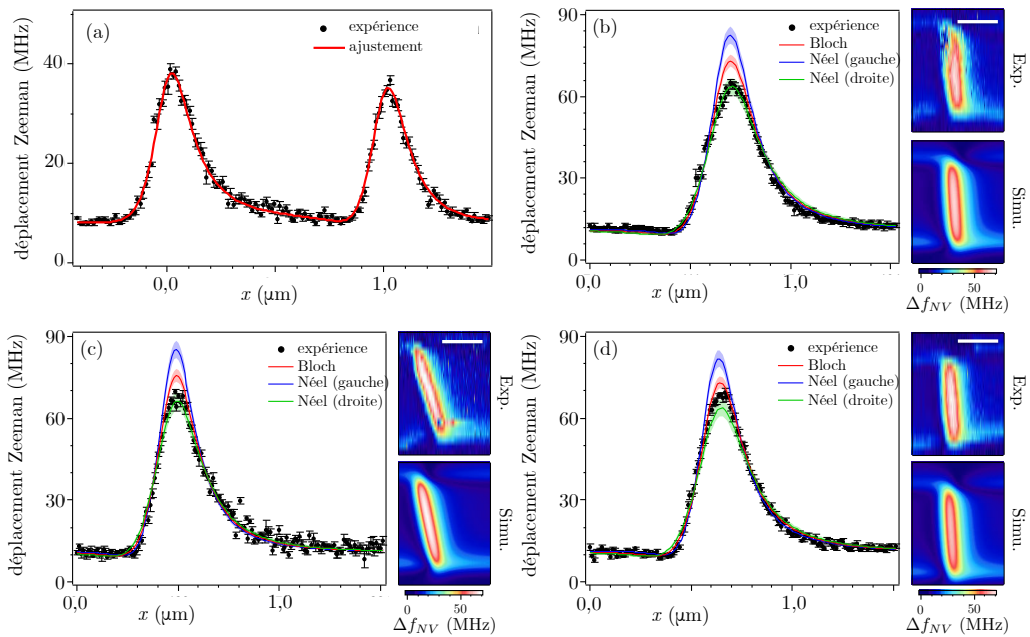


FIGURE 4.13 : **Paroi de Néel (droite) dans W(1)|CoFeB(1)|MgO.** (a) Coupe de calibration. (b), (c) et (d) Mesure du déplacement Zeeman au-dessus de trois parois différentes, contenues dans des pistes de  $1 \mu\text{m}$ . Les barres d'échelle correspondent à 500 nm. Les simulations sont ici également effectuées avec des profils de parois de Néel droite, calculés analytiquement. Les deux premières coupes (b) et (c) indiquent la présence de parois de Néel. La courbe (d) s'écarte du profil attendu pour une paroi de Néel droite.

Les deux premières parois, en figure 4.13(b) et (c), permettent de conclure à la présence d'une paroi purement de type Néel, de chiralité droite. Nous pouvons ainsi placer une borne inférieure pour l'interaction DM, à savoir  $D_{DM} > 0,12 \text{ mJ/m}^2$ . Ce résultat est en accord parfait avec la conclusion de l'étude de Torrejon *et al.* [192]. En revanche, la troisième paroi, en figure 4.13(d), semble s'écarter significativement du cas de la paroi de Néel. La configuration magnétique de la troisième paroi est donc nécessairement différente de celle des deux premières.

On peut proposer plusieurs explications à cette différence de champ de fuite. La première serait une variation locale de  $M_s$ . Cependant, comme nous l'avons montré au chapitre 3, une variation de  $M_s$  conduit à l'apparition d'un champ de fuite. Or, dans tout l'échantillon, nous n'avons détecté aucune fluctuation visible du champ de fuite, hormis au niveau des parois. Nous pouvons donc en principe exclure cette hypothèse.

Une seconde explication pourrait être que la différence de champ est causée par des variations spatiales de l'anisotropie  $K_{\text{eff}}$ , ou de la constante d'échange  $A_{\text{éch}}$ . Dans ce cas, la largeur de la paroi serait modifiée. Dans l'hypothèse où la largeur de la paroi serait plus faible (par exemple si l'anisotropie est plus forte), on se rapprocherait plus du cas d'une paroi de Bloch, ce qui pourrait expliquer notre mesure en figure 4.13(d). Cette hypothèse est à prendre en considération, étant donné que le tungstène joue fortement sur l'anisotropie suivant les orientations de croissance [193]. Dans un échantillon déposé par pulvérisation, il est possible que certaines régions de l'échantillon n'aient pas la même anisotropie que d'autres.

Enfin, une dernière hypothèse serait une variation spatiale de  $D_{DM}$ . Cette hypothèse est plausible, étant donné que l'interaction DM provient des interfaces. Il est en effet possible que celles-ci changent en fonction de la zone de dépôt, dans un échantillon fabriqué par pulvérisation. En supposant que  $D_{DM}$  change de valeur, nous aurions une seconde valeur issue de la figure 4.13(d), de  $D_{DM} \approx 0,047 \text{ mJ/m}^2$ . Pour une meilleure compréhension de l'origine de l'interaction DM, il pourrait être intéressant d'investiguer une telle dépendance spatiale, de manière plus contrôlée.

Comme nous l'avons évoqué, nous ne sommes pas parvenus à établir de mesures dans les échantillons de Hf[CoFeB]MgO. Cependant, des mesures réalisées à l'IEF (Orsay) d'expansions de bulles par des impulsions de champ perpendiculaire, avec l'application d'un champ de compensation de l'interaction DM semblent indiquer une valeur négligeable pour  $D_{DM}$  dans ces échantillons, contrairement aux mesures du groupe de Tsukuba qui indiquent des parois de Néel de chiralité gauche.

En guise de conclusion de cette étude portant sur divers échantillons, nous avons rassemblé en figure 4.14 les résultats obtenus pour les substrats de Pt, Ta, et W. Suivant le substrat utilisé, non-seulement la force de l'interaction DM change, mais également son signe. Outre fournir des indications pour essayer de mieux comprendre l'origine de l'interaction DM d'interface, ce résultat ouvre la voie à de nombreuses possibilités pour modéliser l'interaction DM. En jouant notamment sur les interfaces supérieures et inférieures de la couche magnétique, il est possible d'additionner les effets des deux interfaces (si  $D_{DM}$  est de signe opposé) ou au contraire, de les atténuer.

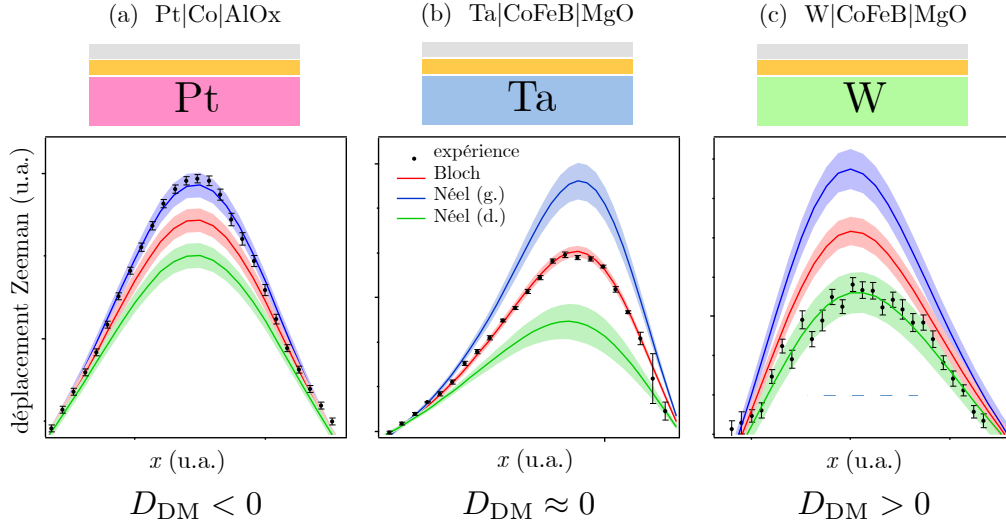


FIGURE 4.14 : **Régler l'interaction DM en modifiant les interfaces.** (a), (b) et (c) rassemblent les conclusions présentées dans figures 4.10, 4.9 et 4.13, résultat de nos mesures dans des couches magnétiques ayant respectivement pour substrat Pt, Ta et W. La mesure de trois valeurs de  $D_{DM}$  différentes illustre la possibilité d'agir sur l'interaction DM d'interface en changeant le substrat métallique. Ceci ouvre la voie à une ingénierie de l'interaction DM dans les couches ultra-minces.

L'intérêt de cette capacité à modifier  $D_{DM}$  apparaît si l'on considère l'énergie de la paroi. En rappelant que la contribution de l'interaction DM est  $\sigma_{DM} = -\pi D_{DM} \cos(\psi)$ , on constate qu'il existe une seconde valeur charnière pour  $D_{DM}$ ,  $D_{c,2} = 4\sqrt{A_{éch} \cdot K_{eff}}/\pi$  [180]. Cette transition correspond au moment où l'énergie associée à l'interaction DM domine l'énergie propre de la paroi  $\sigma_0 = 4\sqrt{A_{éch} \cdot K_{eff}}$ . Au-delà, la paroi sera énergétiquement plus favorable qu'un état ferromagnétique uniforme. On entre alors dans un domaine exotique, riche de nouvelles textures d'aimantation, comme des cycloïdes ou des réseaux de skyrmions [86]. Le régime au voisinage de la transition  $D_{DM} = D_{c,2}$  apparaît encore plus intéressant d'un point de vue applicatif. En effet, se trouver dans ce régime permettrait de créer des skyrmions métastables, des bulles magnétiques nanométriques, possédant une charge topologique, et déplaçables par effet Hall de spin [180, 181, 194, 195].

## 4.4 Conclusion

En résumé, nous avons mis au point une méthode directe pour déterminer la structure des parois dans un film ultra-mince. Cette méthode, s'appuyant sur une mesure quantitative du champ de fuite de la paroi, repose sur la grande similarité qui existe entre le champ du bord d'une piste uniformément aimantée et le champ d'une paroi de Bloch. De cette façon, nous avons tout d'abord prouvé de manière indubitable l'existence d'une interaction de Dzyaloshinskii-Moriya importante à l'interface Pt|Co dans l'échantillon de Pt|Co(0,6)|AlO<sub>x</sub> du groupe de M. Miron (Spintec, Grenoble). Cette étude, aussi bien que la mesure de  $D_{DM} \approx 2,2 \text{ mJ/m}^2$  par BLS [191], tranche définitivement le débat soulevé par l'interprétation de leur article de 2011 [11].

Outre son intérêt fondamental, l'existence d'une forte interaction DM aux interfaces dans certaines couches ultra-minces ouvre de nombreuses perspectives. Tout d'abord, cette interaction permet de forcer les parois dans une configuration de type Néel. Elles peuvent ainsi être déplacées efficacement par les couples issus du couplage spin-orbite comme le SHE. De plus, les parois possédant toutes la même chiralité, elles se propagent toutes dans la même direction sous l'action d'un courant donné. Ce point est notamment crucial pour les applications comme la *racetrack memory*. D'autre part, l'interaction de DM peut, dans certains régimes, conduire à la formation de bulles magnétiques chirales de taille nanométrique, les skyrmions. L'existence de telles bulles à température ambiante reste à démontrer, mais des calculs micro-magnétiques montrent que les skyrmions peuvent être déplacés par SHE, tout comme les parois, et qu'en outre, ils évitent les défauts lors de leur propagation [181, 195].

Il est donc très important de mieux comprendre l'origine de DM, et pour cela d'étudier plusieurs interfaces. Dans ce chapitre, nous avons confronté notre mesure directe de l'interaction DM aux résultats de l'étude du groupe de M. Hayashi [192] dans des couches de CoFeB déposées sur différents substrats. Nous avons notamment vérifié qu'il était possible de changer la force et même le signe de l'interaction DM en changeant de substrat, ce qui ouvre la voie à une possible ingénierie de l'interaction DM.



# Conclusion et perspectives

Dans ce manuscrit, nous avons démontré les potentialités qu'offre la microscopie à centre NV pour étudier divers aspects de la physique des parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces. Cette technique de mesure du champ magnétique, à la fois résolue spatialement et non-perturbatrice, nous a tout d'abord permis d'imager les parois de domaines, là où la microscopie à force magnétique échoue du fait de son caractère invasif. Nous avons ainsi pu étudier aux échelles nanométriques l'interaction de la paroi avec les défauts du matériau, et mis en évidence la présence de sauts de Barkhausen activés thermiquement. La microscopie à centre NV permet en effet de réaliser des mesures à température ambiante. En outre, cette technique donne accès à une mesure quantitative du champ magnétique. Ce caractère quantitatif nous a permis de remonter à la valeur de la densité de moments magnétiques d'une couche ultra-mince, avec une résolution spatiale sub-micrométrique, ce qui constitue un gain de huit ordres de grandeur par rapport aux techniques conventionnelles de magnétométrie, comme le SQUID et le VSM. Enfin, en alliant toutes ces caractéristiques (possibilité d'imager les parois de manière résolue spatialement et mesure quantitative), nous avons mis en œuvre une méthode pour déterminer, de façon simple et non-invasive, la structure des parois de domaines magnétiques (Bloch ou Néel) dans les échantillons ultra-minces. Cette mesure a notamment permis de vérifier la présence de l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DM) d'interface dans plusieurs échantillons. La présence de cette interaction ouvre de nombreuses perspectives pour l'étude de structures magnétiques exotiques à température ambiante, comme les skyrmions, avec autant de potentielles applications. De nouveau, la microscopie à centre NV pourrait apporter un éclairage sur ces objets, en fournissant des images de ces bulles magnétiques chirales de dimensions nanométriques pour étudier leur comportement.

Ceci nous amène à discuter des perspectives pour la microscopie à balayage de centre NV. Nous avons choisi de présenter deux axes possibles pour améliorer la technique, ouvrant chacune la voie à l'étude de systèmes physiques différents.

La première amélioration de la technique serait d'augmenter sa résolution spatiale, et donc diminuer la hauteur de vol. Une des pistes très prometteuses que nous avons évoquée dans ce manuscrit est la réalisation de pointes en diamant massif, dans lesquelles le centre NV est implanté à proximité de la surface. De telles

pointes nous ont été fournies par le groupe de P. Maletinsky de l'Université de Bâle (Suisse). Ces pointes sont gravées à partir d'une membrane de diamant massif où des centres NV ont été implantés à  $\sim 10$  nm de la surface. Elles sont constituées d'un levier en diamant, supportant un pilier de 200 nm de diamètre qui contient le centre NV [cf. figure 4.15(a)]. Nous avons réalisé des expériences préliminaires pour caractériser ces pointes, et en particulier mesuré la hauteur de vol  $d$  du centre NV. Nos premières mesures semblent indiquer au mieux une hauteur de  $\sim 40$  nm [cf. figure 4.15(d)], ce qui représente déjà un gain d'une quarantaine de nanomètres par rapport aux distances typiquement obtenues avec des nano-diamants. Cependant, au cours de l'acquisition d'images sur nos échantillons, la pointe tend à capter des poussières qui éloignent le centre NV de la surface. Outre la réduction de la hauteur de vol, les pointes en diamant ont un second avantage important. Du fait du guidage de la lumière dans le pilier en diamant, l'intensité de photoluminescence collectée (de l'ordre de 300 photons/ms à saturation) est beaucoup plus importante que dans les nano-diamants [cf. figure 4.15(b)] et l'excitation par le laser vert est plus efficace. La puissance requise pour exciter optiquement le centre NV étant plus faible, les risques de perturber l'échantillon par un chauffage induit par le laser sont moindres.

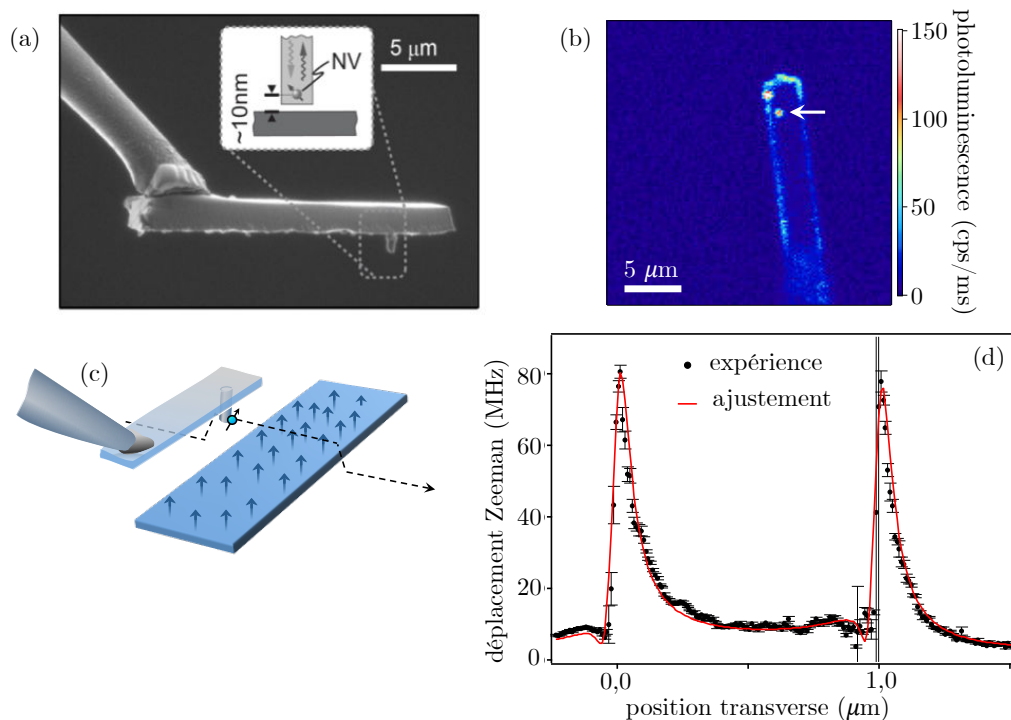


FIGURE 4.15 : **Pointes en diamant pour améliorer la résolution.** (a) Image en microscopie électronique des pointes fabriquées par P. Maletinsky *et al.* [147]. (b) Image de photoluminescence au-dessus du levier en diamant. Le pilier contenant un centre NV est indiqué par la flèche blanche. (c) Rappel du principe de la mesure de hauteur de vol  $d$ , présentée au chapitre 3. On enregistre le déplacement Zeeman du centre NV sur une coupe au-dessus d'une piste magnétique uniformément aimantée. (d) Résultats de la mesure de hauteur de vol pour une pointe en diamant, sur un échantillon de CoFeB(1 nm). On mesure  $d \approx 41$  nm.

La perspective de réduire la distance de vol est un aspect très important. En plus d'améliorer la résolution spatiale du microscope, la diminution de  $d$  permet également d'améliorer la sensibilité du microscope. Le champ d'un dipôle magnétique unique décroissant comme  $1/d^3$ , la valeur du champ de fuite s'effondre en effet lorsque l'on s'écarte de la surface du matériau. Pour les parois de domaines, nous avons montré que le champ était largement mesurable à  $\sim 100$  nm de la surface. Cependant, si l'on souhaite s'intéresser à des structures plus petites, comme les skyrmions magnétiques, il est extrêmement important de gagner à la fois en résolution et en sensibilité en se rapprochant de la surface du matériau. Au-delà de l'étude d'échantillons ferromagnétiques, réduire la hauteur de vol pourrait même permettre d'imager les champs de fuite correspondant aux compensations imparfaites des moments magnétiques dans les matériaux antiferromagnétiques.

La seconde amélioration du microscope, plus conséquente, serait de réaliser un microscope fonctionnant à des températures cryogéniques. Le développement d'un tel instrument a fait l'objet d'une partie importante de mon travail de thèse. L'expérience en développement est similaire à celle dont nous disposons à température ambiante. La différence réside dans le fait que l'ensemble du microscope à centre NV est contenu dans une chambre, immergée dans un bain d'hélium liquide, ce qui permet d'atteindre une température proche de 4 K. Des expériences similaires sont en cours de réalisation dans plusieurs groupes dans le monde, parmi lesquels celui de P. Maletinsky, ainsi que celui d'A. Bleszynski Jayich (Santa Barbara, États-Unis) qui a récemment publié des mesures de microscopie à balayage de centre NV à basse température [196]. Disposer d'un tel instrument permet d'imaginer de très nombreuses pistes d'étude, depuis la physique des vortex supraconducteurs [92, 197], jusqu'au diamagnétisme du graphène [198]. Celle que nous désirons explorer en premier lieu est l'étude de semi-conducteurs ferromagnétiques, et en particulier les composés du type  $(\text{Ga},\text{Mn})(\text{As},\text{P})$ . Ces matériaux présentent en effet une physique extrêmement riche, avec la propriété d'être ferromagnétiques à basse température et de bénéficier dans le même temps de toute la flexibilité des semi-conducteurs notamment en termes de dopage. Il est par exemple possible, en changeant le dopage du matériau, de contrôler les directions de l'anisotropie magnétique, et de passer ainsi de couches magnétiques à aimantation planaire à des couches à aimantation perpendiculaire au plan de l'échantillon [199].

Si ces matériaux présentent une physique riche, celle-ci contient encore beaucoup de points à élucider. Par exemple, l'absence d'étude aux très petites échelles laisse encore la place à des questions quant à l'homogénéité de l'aimantation dans des couches supposées uniformes. D'autre part, la nature des parois de domaines dans les couches de  $(\text{Ga},\text{Mn})(\text{As},\text{P})$  à aimantation perpendiculaire au plan de l'échantillon, et à aimantation planaire, pose les mêmes questions que dans les couches ultra-minces. L'influence de l'injection d'un courant dépolarisé en spin dans un semiconducteur ferromagnétique, et notamment le lien entre ce courant et l'évolution de la structure des parois magnétiques reste également à clarifier [200].

En conclusion, la microscopie à balayage de centre NV ouvre de très nombreuses perspectives. Cette technique sera très sûrement amenée à apporter des éclairages nouveaux sur beaucoup de domaines variés, bien au-delà des problématiques que nous avons abordées dans cette thèse.

# Calculs de champ de fuite d'une structure magnétique et simulation de cartographies obtenues avec le centre NV

## Sommaire

---

<b>A.1</b>	<b>Approche Coulombienne de la magnétostatique . . . . .</b>	<b>135</b>
<b>A.2</b>	<b>Champ au bord d'une couche magnétique à aimantation perpendiculaire . . . . .</b>	<b>137</b>
<b>A.3</b>	<b>Simulations d'une structure quelconque . . . . .</b>	<b>139</b>
A.3.1	Champ de fuite pour une cellule élémentaire . . . . .	139
A.3.2	Calcul du champ total . . . . .	140
A.3.3	Application de la réponse du centre NV . . . . .	141
A.3.4	Exemple d'utilisation pour le fit d'un profil <i>iso-B</i> . . . . .	142

---

Nous allons ici présenter la manière dont nous procédons pour calculer les cartographies de champ ou de déplacement Zeeman. Certaines parties, à vocation purement didactique, ont seulement été introduites par souci de cohérence et de clarté. Elles s'inspirent assez largement de divers ouvrages de magnétisme, et notamment de la référence [23].

## A.1 Approche Coulombienne de la magnétostatique

Nous cherchons souvent à obtenir des informations sur l'aimantation dans un matériau mais notre technique ne nous donne accès qu'au champ magnétique. Il est donc avant tout nécessaire d'explicitier le lien entre ces deux grandeurs.

Il existe deux voies pour calculer le champ magnétique créé par de la matière : l'approche Ampérienne, qui se base sur le calcul du champ créé par des densités de courants, et l'approche Coulombienne. C'est cette dernière,

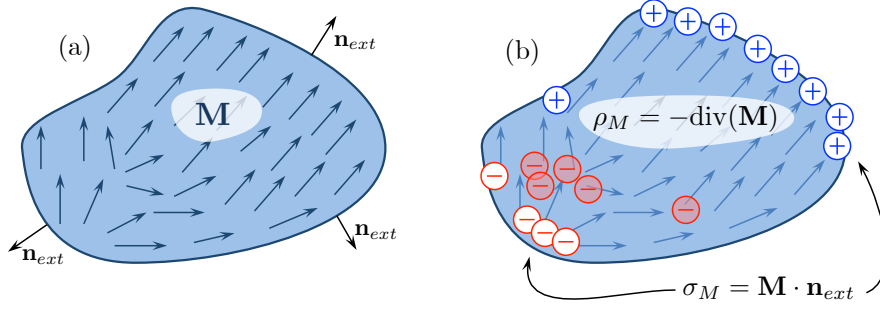


FIGURE A.1 : **Approche Coulombienne.** (a) Solide présentant un champ d'aimantation  $\mathbf{M}$ . (b) Même solide, où l'aimantation est cette fois décrite par des distributions de charges magnétiques. Cette approche permet de calculer simplement le champ magnétique, par analogie avec l'électrostatique.

plus appropriée au calcul d'un champ créé par des moments magnétiques, que nous avons utilisé et que nous allons détailler ici.

A l'intérieur de la matière, on a

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M})$$

où  $\mathbf{B}$  est l'induction définie par les équations de Maxwell, et  $\mathbf{H}$  le champ magnétique. Dans le cas où l'on n'applique aucun champ magnétique externe,  $\mathbf{H}$  correspond seulement au champ dipolaire noté  $\mathbf{H}_{\text{dip}}$  créé par la matière. L'équation locale de Maxwell qui impose à la divergence de l'induction  $\text{div}(\mathbf{B})$  d'être nulle lie le champ à l'aimantation par

$$\text{div}(\mathbf{H}_{\text{dip}}) = -\text{div}(\mathbf{M}) \quad (\text{A.1})$$

Dans cette expression  $-\text{div}(\mathbf{M})$  apparaît donc comme un terme source du champ magnétique, exactement de la même manière que la charge  $\rho$  est un terme source du champ électrique dans l'équation de Maxwell-Gauss. On peut en fait pousser cette analogie avec l'électrostatique et définir  $\rho_M = -\text{div}(\mathbf{M})$ , la densité volumique de charges magnétiques. Aux interfaces, où  $\mathbf{M}$  peut passer brutalement d'une valeur non-nulle à  $\mathbf{0}$ , la définition d'une densité surfacique de charges  $\sigma_M = \mathbf{M} \cdot \mathbf{n}_{ext}$  (où  $\mathbf{n}_{ext}$  est la normale à la surface orientée vers l'extérieur du matériau) permet de pallier le problème introduit par la singularité de  $-\text{div}(\mathbf{M})$ . Cette description est illustrée en figure A.1.

Comme  $\text{rot}(\mathbf{H}_{\text{dip}}) = \mathbf{0}$  (il n'y a pas de courants, puisqu'on a traité les sources de champ comme des moments magnétiques), on peut pousser l'analogie plus loin et écrire le champ dipolaire comme la dérivée d'un potentiel  $V$  :

$$\mathbf{H}_{\text{dip}} = -\text{grad}(V) \quad (\text{A.2})$$

avec, en complète analogie avec l'électrostatique,

$$V(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi} \iiint_{\mathcal{V}} \frac{\rho_M(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathcal{V} + \iint_{\partial\mathcal{V}} \frac{\sigma_M(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathcal{S} \quad (\text{A.3})$$

Cette manière de calculer le champ à partir de distributions de charges magnétiques est appelée approche

Coulombienne, et a l'avantage de ne faire intervenir que le calcul d'un potentiel scalaire au lieu d'un potentiel vecteur pour l'approche Ampérienne.

On remarque bien dans les équations (A.2) et (A.3) que le champ  $\mathbf{H}_{\text{dip}}$  et l'aimantation sont liés par des relations linéaires, et donc  $\mathbf{H}_{\text{dip}}$  est linéaire en  $M_s$ , comme souligné dans le chapitre 3, ce qui correspond bien à l'idée intuitive que l'on peut avoir de  $\mathbf{H}_{\text{dip}}$ .

## A.2 Champ au bord d'une couche magnétique à aimantation perpendiculaire

Dans le cas des couches à aimantation perpendiculaire uniformément aimantée, on a uniquement des charges magnétiques de surface, par exemple  $+$  sur le plan supérieur de la couche et  $-$  sur le plan inférieur [cf. figure A.2(a)]. C'est donc l'équivalent d'un condensateur en électrostatique, comme mentionné dans le chapitre 3. Nous allons voir que, comme dans un condensateur, le champ n'existe qu'aux extrémités de la couche magnétique.

Nous allons calculer le champ attendu au-dessus du bord d'un demi-plan uniformément aimanté. On supposera sans perdre en généralité que la couche est aimantée vers le haut, horizontale, d'épaisseur  $t$  suivant la verticale  $\hat{z}$ , infinie suivant  $\hat{y}$  et comprise entre  $-\infty$  et  $0$  dans la direction  $\hat{x}$ .

Avec la définition introduite plus tôt, on a

$$\sigma_M = \begin{cases} +M_s & \text{en } z = +t/2, \text{ sur la surface supérieure } \mathcal{S}_{+t/2} \\ -M_s & \text{en } z = -t/2, \text{ sur la surface inférieure } \mathcal{S}_{-t/2} \end{cases},$$

et

$$\rho_M = 0.$$

Partant de ces distributions de charges, on peut calculer le potentiel  $V(\mathbf{r})$  en n'importe quel point  $\mathbf{r}(x,y,z)$  par

$$V(\mathbf{r}) = \frac{M_s}{4\pi} \left( \int_{\mathbf{r}' \in \mathcal{S}_{+t/2}} \frac{d\mathcal{S}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} - \int_{\mathbf{r}' \in \mathcal{S}_{-t/2}} \frac{d\mathcal{S}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \right),$$

qui donne après intégration, puis calcul du gradient, hors de la matière

$$\begin{aligned} E_x^{bd}(x,y,z) &= \mu_0 \mathbf{H}_{\text{dip},x}^{bd} = \frac{\mu_0 M_s}{4\pi} \ln \left( \frac{x^2 + (d + \frac{t}{2})^2}{x^2 + (d - \frac{t}{2})^2} \right) \\ E_z^{bd}(x,y,z) &= \mu_0 \mathbf{H}_{\text{dip},z}^{bd} = \frac{\mu_0 M_s}{2\pi} \left[ \text{atan} \left( \frac{x}{d + \frac{t}{2}} \right) - \text{atan} \left( \frac{x}{d - \frac{t}{2}} \right) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

où le champ ne dépend pas et n'a pas de composante suivant  $y$ , pour des raisons de symétrie.

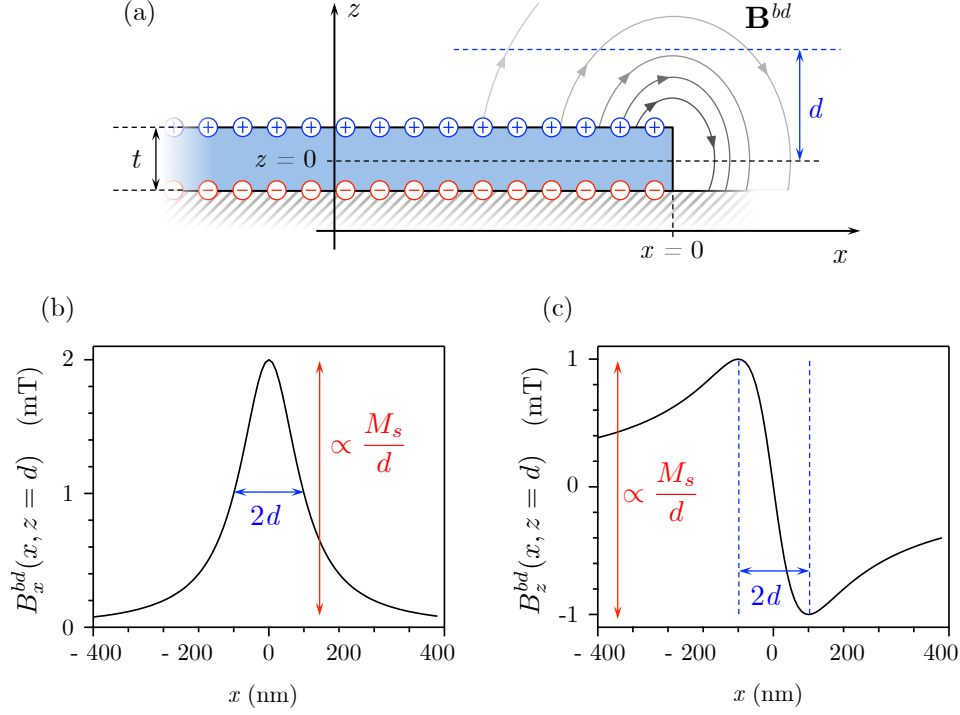


FIGURE A.2 : **Calcul du champ de bord de piste.** (a) Schéma du bord la piste magnétique, dans une description Coulombienne de la magnétostatique. L'aimantation est représentée par des charges magnétiques, de part et d'autre de la piste, comme dans un condensateur en électrostatique. (b) Composante  $B_x^{bd}$  du champ de fuite d'un bord, à une distance  $d = 100$  nm de la piste. (c) Composante  $B_z^{bd}$  du champ magnétique, au-dessus du bord, également pour  $d = 100$  nm.

Cette expression un peu lourde se simplifie très bien si on s'éloigne de la couche magnétique, *i.e.* pour  $z \gg t$ , en

$$\begin{aligned}
 B_x^{bd}(x,z) &= \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \left( \frac{z}{x^2 + z^2} \right) + O\left(\left(\frac{t}{z}\right)^3\right) \\
 B_z^{bd}(x,z) &= -\frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \left( \frac{x}{x^2 + z^2} \right) + O\left(\left(\frac{t}{z}\right)^3\right)
 \end{aligned} \tag{A.5}$$

On retrouve ici les expressions du chapitre 3. Nous avons reproduit en figure A.2 la figure 3.1 du chapitre 3, où les expressions (A.5) sont tracées, pour une distance  $z = 100$  nm fixée, avec  $M_s = 1$  MA/m et  $t = 1$  nm.

Dans la pratique, puisque l'on ne considère que des couches ultra-minces d'épaisseur  $t$  de l'ordre ou inférieure au nanomètre, l'approximation  $z \gg t$  est toujours largement valide et tous les calculs sont effectués avec la formule approchée. En effet, même dans le cas extrême où le centre NV ne serait qu'à  $z = 10$  nm de la surface de la couche magnétique, l'erreur causée par l'approximation  $z \gg t$  reste inférieure au pourcent.

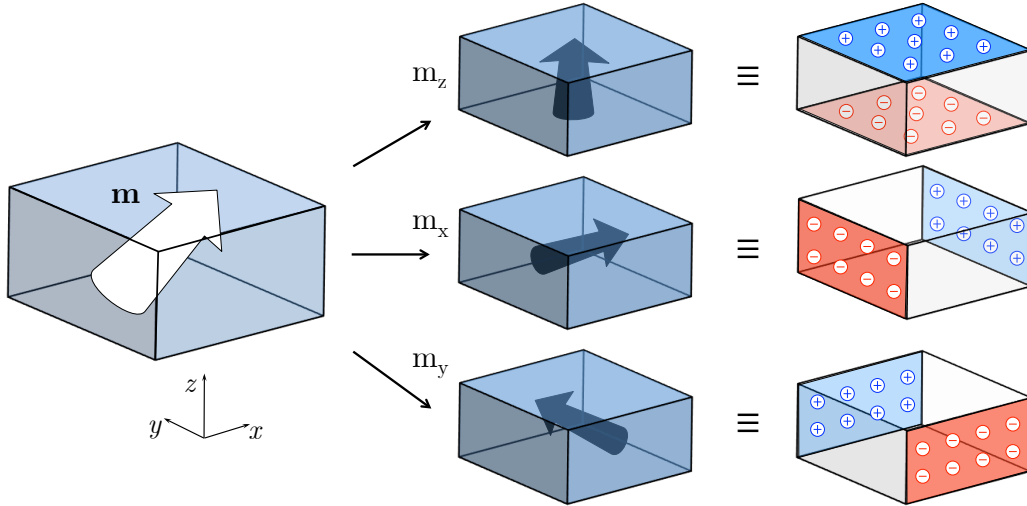


FIGURE A.3 : Calcul du champ créé par une cellule élémentaire. L'aimantation se décompose suivant les trois axes  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  en  $m_x$ ,  $m_y$  et  $m_z$ . Par linéarité, on peut séparer le calcul du champ créé par chaque composante. On est donc ramené au calcul du champ de trois « condensateurs », par analogie avec l'électrostatique.

### A.3 Simulations d'une structure quelconque

Dans le cas du calcul numérique du champ de fuite d'une figure d'aimantation quelconque, on peut encore une fois utiliser la linéarité du champ magnétique en l'aimantation. On va ainsi découper la structure en cellules élémentaires uniformément aimantées, calculer le champ produit pour chacune de ces cellules puis sommer l'ensemble des contributions de chaque cellule élémentaire.

#### A.3.1 Champ de fuite pour une cellule élémentaire

La manière la plus simple (numériquement) pour découper la figure d'aimantation dont on souhaite calculer le champ est de définir des cellules parallélépipédiques. On commence donc par calculer le champ produit par une de ces cellules, où règne une aimantation uniforme, mais arbitraire,  $\mathbf{m} = m_x \mathbf{u}_x + m_y \mathbf{u}_y + m_z \mathbf{u}_z$  [cf. figure A.3]

Si on décompose encore le problème en séparant la contribution des trois composantes de l'aimantation suivant les trois axes de la cellule élémentaire, on est en fait de nouveau ramené au calcul du champ de trois condensateurs, uniformément aimantés suivant  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  [cf. figure A.3]. Calculons donc le champ d'une cellule de taille  $2a \times 2b \times 2c$  suivant ces directions, et aimantée dans la direction  $\hat{x}$ .

On a cette fois

$$V(x,y,z) = \frac{1}{4\pi} \left( \iint_{[-b,b] \times [-c,c]} \frac{dy' dz'}{\sqrt{(x-a)^2 + (y-y')^2 + (z-z')^2}} - \iint_{[-b,b] \times [-c,c]} \frac{dy' dz'}{\sqrt{(x+a)^2 + (y-y')^2 + (z-z')^2}} \right)$$

ce qui donne, après intégration et calcul du gradient <sup>1</sup> (page suivante)

1. Ces formules sont tirées du manuscrit de thèse de L. Rondin [112]



$$B_{x,m_x} = \frac{-\mu_0}{4\pi} \sum_{i=\pm 1} \sum_{j=\pm 1} \sum_{k=\pm 1} ijk \operatorname{atan} \left( \frac{(y+jb)(z+kc)}{(x+ia)\sqrt{(x+ia)^2+(y+jb)^2+(z+kc)^2}} \right)$$

$$B_{y,m_x} = \frac{-\mu_0}{8\pi} \ln \left[ \prod_{i=\pm 1} \prod_{j=\pm 1} \prod_{k=\pm 1} \left( \frac{(z+kc) - \sqrt{(x+ia)^2+(y+jb)^2+(z+kc)^2}}{(z+kc) + \sqrt{(x+ia)^2+(y+jb)^2+(z+kc)^2}} \right)^{ijk} \right]$$

$$B_{z,m_x} = \frac{-\mu_0}{8\pi} \ln \left[ \prod_{i=\pm 1} \prod_{j=\pm 1} \prod_{k=\pm 1} \left( \frac{(y+jb) - \sqrt{(x+ia)^2+(y+jb)^2+(z+kc)^2}}{(y+jb) + \sqrt{(x+ia)^2+(y+jb)^2+(z+kc)^2}} \right)^{ijk} \right]$$

Les champs produits par les autres composantes de l'aimantation,  $\mathbf{B}_{m_y}$  et  $\mathbf{B}_{m_z}$ , s'obtiennent en permutant convenablement les variables  $\{a,b,c\}$  et  $\{x,y,z\}$  dans ces formules. On dispose donc finalement d'une expression analytique pour le champ magnétique produit par un parallélépipède uniformément aimanté dans une direction quelconque. Un exemple de calcul de champ est présenté, pour la composante  $m_z$  seulement, en figure A.4(b).

### A.3.2 Calcul du champ total

On cherche, à partir du champ calculé pour une seule cellule, à remonter au champ total, c'est à dire à sommer la contribution de chaque cellule élémentaire, pondérée par son aimantation. Il se trouve que cette opération correspond à un simple produit de convolution. Considérons par exemple la composante  $m_x$  de l'aimantation, définie sur toutes les cellules élémentaires  $\square_i$  de position  $\mathbf{r}_i$ , et exprimons la composante verticale  $B_z(\mathbf{r})$  du champ au point  $\mathbf{r}$ . On a

$$B_z(\mathbf{r}) = \sum_{\square_i} B_{z,m_x}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) m_x(\mathbf{r}_i)$$

où le produit de convolution apparaît maintenant de manière explicite. On peut bien entendu suivre le même raisonnement pour toutes les composantes du champ, et toutes les composantes de l'aimantation.

Le calcul du champ de fuite total revient donc à un simple produit de convolution. Ceci est très pratique, puisque si l'on se place dans l'espace réciproque, le produit de convolution s'exprime comme un produit de transformées de Fourier (discrètes). Pourvu que l'on ait découpé régulièrement l'aimantation, on peut utiliser l'algorithme très efficace de FFT (Fast Fourier Transform). Une fois le champ d'une seule cellule élémentaire calculé, on peut quasi-instantanément calculer le champ d'une cartographie comprenant plusieurs milliers de cellules élémentaires, et donc des figures très complexes d'aimantation.

Un exemple de calcul du champ de fuite au-dessus d'une paroi de domaine est détaillé en figure A.4. Nous n'avons présenté que la composante  $M_z$  de l'aimantation, mais les étapes suivies pour les deux autres composantes sont identiques. On commence par découper l'aimantation en cellules élémentaires, puis on calcule le champ pour une seule cellule, et on remonte au champ total par une opération de convolution.

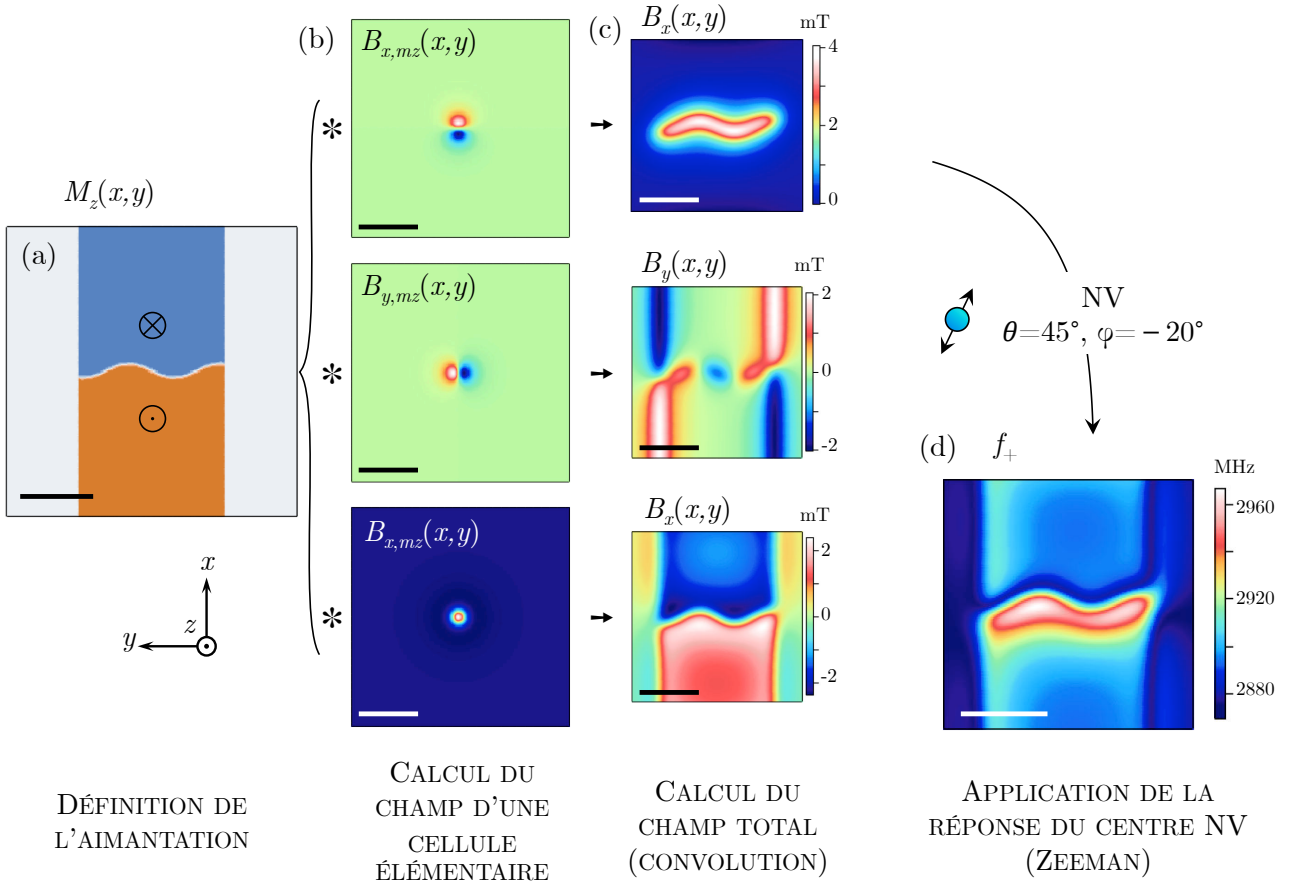


FIGURE A.4 : **Principe du calcul complet du champ de fuite.** (a) Composante  $M_z$  de l'aimantation dont on cherche à déterminer le champ de fuite. (b) Cartographies complètes du champ de fuite, calculées pour une seule cellule élémentaire de l'aimantation en (a), pour  $d = 100$  nm. Cette cellule est uniformément aimantée suivant  $\hat{z}$ , avec  $m_z = 1$ . L'échelle de champ est arbitraire, car elle dépend du volume du parallélépipède et donc du découpage choisi pour l'aimantation totale. La convolution du profil complet d'aimantation  $M_z$  (en (a)) avec le champ d'une cellule élémentaire (en (b)) permet de calculer les trois composantes du champ total  $B_{x,M_z}$ ,  $B_{y,M_z}$  et  $B_{z,M_z}$  créé par la composante  $M_z$ . (c) En sommant les contributions des composantes  $M_x$ ,  $M_y$  et  $M_z$  de l'aimantation, on obtient finalement les trois composantes du champ de fuite total  $B_x$ ,  $B_y$  et  $B_z$ . (d) Fréquence supérieure  $f_+$  de résonance magnétique du centre NV, calculée dans le champ en (c), en diagonalisant le Hamiltonien de l'effet Zeeman. (barres d'échelle : 500 nm)

### A.3.3 Application de la réponse du centre NV

Une fois que l'on a calculé la totalité du champ de fuite, il ne reste plus qu'à parcourir l'ensemble de la zone de calcul, et appliquer pixel par pixel la réponse du centre NV, en diagonalisant numériquement le Hamiltonien de l'effet Zeeman introduit au chapitre 2

$$\mathcal{H} = hDS_Z^2 + hE(S_X^2 - S_Y^2) + g\mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}.$$

L'étape de diagonalisation est notamment détaillée dans le manuscrit de thèse de L. Rondin [112]. Elle permet de repérer, en chaque point de la répartition du champ de fuite, les deux fréquences  $f_+$  et  $f_-$  de résonance magnétique du centre NV. C'est à cette étape que l'orientation du centre NV  $(\theta, \phi)$ , ainsi que les paramètres  $E$  et  $D$  du spin électronique interviennent.

On obtient finalement deux cartographies, correspondant à la position des deux fréquences  $f_+$  et  $f_-$  en chaque point de l'échantillon. De la position de ces deux fréquences, on peut construire la carte du déplacement Zeeman, correspondant à la réponse du centre NV, au-dessus d'une répartition arbitraire d'aimantation. Dans la pratique, on se borne généralement à tracer la cartographie correspondant à une seule des deux fréquences, par exemple  $f_+$ . En effet, nous n'acquérons expérimentalement que la position d'une seule des deux fréquences. Sur la figure A.4(d), nous avons montré l'exemple d'un calcul de la position de la fréquence  $f_+$  d'un centre NV d'orientation  $(\theta = 45^\circ, \phi = 20^\circ)$ , qui serait balayé dans les profils de champ de la figure A.4(d).

### A.3.4 Exemple d'utilisation pour le fit d'un profil *iso-B*

Un des intérêts de pouvoir calculer rapidement le champ de fuite attendu au-dessus d'une structure est la possibilité d'ajuster des images expérimentales. Nous allons détailler ici cet ajustement des profils de parois. On peut ainsi parvenir aux profils présentés dans le chapitre 2, pour l'étude des sauts de Barkhausen.

En principe, une paroi devrait être rectiligne, afin de minimiser l'énergie globale. Le coût énergétique d'une paroi est en effet proportionnel à sa longueur  $l_{\text{paroi}}$  [cf. chapitres 1 et 2]. Cependant, nous avons observé dans le chapitre 2 que la paroi peut suivre un profil sinueux, en « s'accrochant » sur les défauts du matériau. La question est de savoir comment remonter à ce profil à partir d'une image du champ de fuite de la paroi de domaine magnétique.

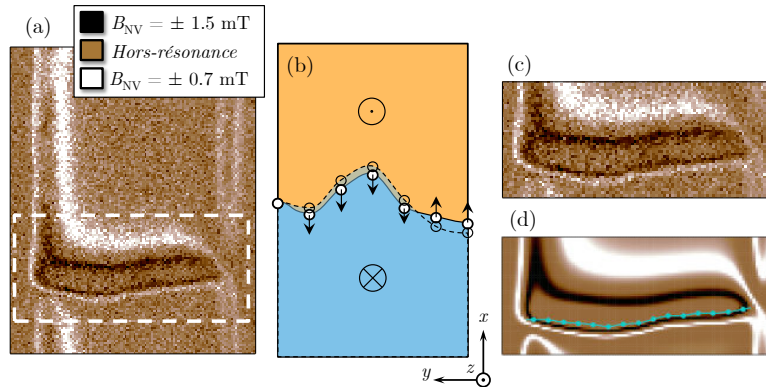


FIGURE A.5 : **Ajustement des cartographies en iso-B.** (a) Image expérimentale, que l'on souhaite ajuster par un profil d'aimantation. (b) Modèle utilisé pour ajuster les données expérimentales. La paroi est modélisée par une fonction polynômiale par morceaux. L'ajustement se fait sur la position transverse des points d'ancrage (ronds blancs). (c) Zoom sur la région en pointillés dans l'image *iso-B* présentée en (a). (d) Résultat d'un ajustement du profil iso-B dans la région de la paroi. La ligne turquoise correspond au profil de la paroi de domaine.

Dans ce but, nous tentons d'ajuster nos données expérimentales par des calculs de champ, en jouant sur le modèle du profil de la paroi. Nous venons d'introduire la manière dont nous calculons le déplacement Zeeman du centre NV au-dessus d'un échantillon magnétique. Il ne reste donc qu'à expliciter la façon dont nous définissons le profil transverse de la paroi.

Nous définissons une série de  $N_p$  points, de coordonnées  $(x_i, y_i)_{i \in [1, N_p]}$ , uniformément répartis en travers de la piste magnétique (suivant  $\hat{y}$ ). Entre ces points, la position de la paroi est interpolée par des polynômes [cf. figure A.5(b) et (d)]. On obtient ainsi un profil lisse. On peut notamment calculer l'orientation locale de la paroi, et adapter les profils de Bloch et Néel, en définissant l'angle  $\psi$  par rapport à la normale à la paroi.

Une fois que l'on a défini un profil de paroi, on sélectionne seulement une petite portion de l'image expérimentale qui contient la paroi, marquée en pointillés sur la figure A.5(a). Enfin, on ajuste la portion de l'image expérimentale de la paroi, en jouant sur les positions transverses  $x_i$  de chaque point, de façon à ce que l'écart quadratique soit minimisé entre l'image expérimentale et l'image simulée. On obtient finalement un profil ajusté, tel que présenté en figure A.5(d). En répétant plusieurs fois la procédure d'ajustement, nous avons estimé la résolution spatiale transverse (suivant  $\hat{x}$ ) étant approximativement de  $\sim 30$  nm, pour un découpage de 100 nm suivant  $\hat{y}$ , sur les courbes présentées au chapitre 2. La hauteur de vol dans ces mesures était de  $d \approx 110$  nm. Le fait que la précision sur l'ajustement soit meilleure que la hauteur de vol, provient certainement du critère empirique que nous avons utilisé pour déterminer la résolution spatiale de l'instrument [chapitre 3], qui ne prend pas en compte la possibilité de déconvoluer les données par un ajustement. Dans tous les cas, l'ordre de grandeur demeure le même.

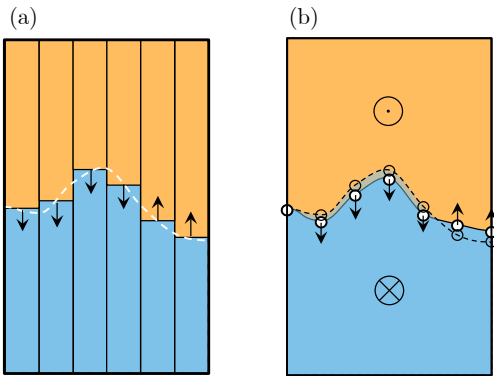


FIGURE A.6 : Différents modèles utilisés pour ajuster les cartographies *iso-B*. (a) Ancienne version, correspondant aux ajustements présentés dans l'étude des sauts de Barkhausen [chapitre 2]. La piste est découpée en bandes de tailles égales. Le profil de la paroi est modélisé par un profil en escalier. (b) Nouvelle version, utilisée pour ajuster les profils de parois pour la détermination de leur nature (Bloch ou Néel) [chapitre 4].

**Remarque :** les profils de parois, présentés au chapitre 2 pour l'étude des sauts de Barkhausen, ont en fait été originellement ajustés avec un modèle plus simple mais plus coûteux en calcul. Au lieu de découper l'aimantation en milliers de cellules élémentaires, le profil de la paroi est découpé en escalier, comme illustré en figure A.6(a). La piste est donc une succession de  $N_B$  bandes de largeurs égales, contenant chacune une paroi droite. Le calcul du champ de fuite total est simplement ramené au calcul du champ de fuite au-dessus de  $2N_B$  parallélépipèdes rectangles. À partir de là, on peut appliquer la réponse du centre NV au champ et ajuster les données exactement de la même manière que pour un profil lisse, en déplaçant la position transverse des  $N_B$  morceaux de parois.

Si la largeur des bandes est de l'ordre de  $d$ , la hauteur de vol, on arrive essentiellement au même résultat avec un profil en escalier qu'avec un profil lisse. La principale différence est le temps de calcul, plus court pour un découpage régulier du fait de l'utilisation de l'algorithme de FFT. C'est pour cela que nous avons abandonné le découpage en escalier pour l'étude de la nature (Bloch ou Néel) des parois de domaines.

# Détails sur la détermination de la nature de paroi

## Sommaire

---

<b>B.1 Erreurs sur les prédictions de champ</b>	<b>145</b>
<b>B.2 Comparaison entre simulation micromagnétique et profil analytique pour l'aimantation</b>	<b>150</b>

---

Cette annexe fournit plus de détails sur la détermination de la nature des parois, Bloch ou Néel, du chapitre 4. Nous commencerons par discuter l'estimation des incertitudes de la méthode. Ensuite, nous regarderons la différence sur le champ de fuite calculé, entre une simulation complète micromagnétique de l'aimantation et l'utilisation d'une expression analytique pour décrire l'aimantation.

## B.1 Erreurs sur les prédictions de champ

Dans cette discussion, nous nous appuyons sur les expressions analytiques du chapitre 4, décrivant le champ magnétique de fuite  $\mathbf{B}^\perp$  créé par la composante de l'aimantation perpendiculaire au plan de la couche magnétique, et le champ magnétique  $\mathbf{B}^\parallel$  issu de la composante de l'aimantation contenue dans le plan de la couche magnétique. Pour éviter les confusions avec le champ des bords de piste, ces composantes sont ici dénotées  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^\parallel$  et  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^\perp$ . On rappelle également que le champ d'une paroi de Bloch correspond uniquement à la composante  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^\perp$ , tandis que le champ d'une paroi de Néel est donné par  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^\perp \pm \mathbf{B}_{\mathbf{0},\text{paroi}}^\parallel$ .

Dans les faits, les prédictions théoriques sont comparées aux données expérimentales au niveau du maximum du champ magnétique, puisque c'est à cet endroit que la différence de champ est la plus forte entre une paroi de Néel et une paroi de Bloch. Étant données les valeurs de champ considérées ( $\sim$  mT), nous pouvons raisonnablement nous placer dans l'approximation où le déplacement Zeeman  $\Delta f_{NV}$  est directement proportionnel au champ projeté sur l'axe du centre NV, *i.e.*  $\Delta f_{NV} = g\mu_B B_{NV}/h$ . Pour plus de clarté, nous nous intéresserons

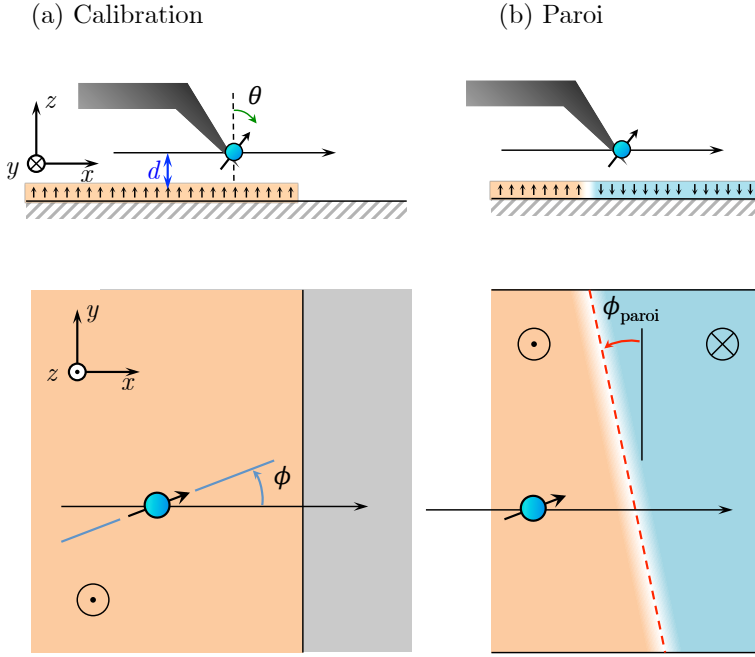


FIGURE B.1 : **Géométrie de l'expérience.** En (a) l'expérience de calibration, décrite au chapitre 3, et en (b) la mesure du champ au-dessus de la paroi, sont décrites dans le même référentiel défini par la piste de calibration. Dans ce référentiel, l'orientation du centre NV est décrite par les angles  $\theta$  et  $\phi$ , et sa hauteur de vol est  $d$ . La paroi est modélisée par une paroi droite, formant un angle  $\phi_{\text{paroi}}$  avec la piste de calibration.

donc uniquement au champ  $B_{NV}$ . D'autre part, l'orientation de la piste magnétique servant à la calibration peut être connue avec une précision bien meilleure que le degré par rapport au référentiel de l'expérience. Nous pouvons donc, quitte à redéfinir les angles  $\theta$  et  $\phi$  du centre NV, nous placer dans le référentiel où l'axe  $\hat{z}$  correspond à la verticale, et l'axe  $\hat{x}$  correspond à la normale à la piste de calibration, tel que décrit en figure B.1(a). Comme indiqué sur la figure B.1(b), la paroi peut être décrite comme localement droite, formant alors un angle  $\phi_{\text{paroi}}$  avec le bord de la piste de calibration. À part cela, les conditions entre les deux parties de l'expérience sont identiques.

**Précision sur l'estimation de la composante  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^{\perp}$**  Considérons tout d'abord la composante perpendiculaire de l'aimantation de la paroi,  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^{\perp}$ . Cette composante est simplement donnée par les équations (4.4) auxquelles on a appliqué une rotation d'angle  $\phi_{\text{paroi}}$ . À une distance  $d$  de la couche magnétique, on obtient donc pour une paroi située en  $x_{\text{paroi}}$  :

$$\begin{cases} B_{x,\text{paroi}}^{\perp}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \left( \frac{d \cos(\phi_{\text{paroi}})}{[(x - x_{\text{paroi}}) \cos(\phi_{\text{paroi}})]^2 + d^2} \right) \\ B_{y,\text{paroi}}^{\perp}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \left( \frac{d \sin(\phi_{\text{paroi}})}{[(x - x_{\text{paroi}}) \cos(\phi_{\text{paroi}})]^2 + d^2} \right) \\ B_{z,\text{paroi}}^{\perp}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \left( \frac{(x - x_{\text{paroi}}) \cos(\phi_{\text{paroi}})}{[(x - x_{\text{paroi}}) \cos(\phi_{\text{paroi}})]^2 + d^2} \right) \end{cases} \quad (\text{B.1})$$

Dans notre expérience, nous mesurons la valeur absolue de la projection de ce champ sur l'axe du centre

NV, repéré par les angles  $\theta$  et  $\phi$ . Nous obtenons donc pour  $B_{NV,\text{paroi}}^\perp$  :

$$B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x) = |\sin(\theta) [\cos(\phi)B_{x,\text{paroi}}^\perp(x) + \sin(\phi)B_{y,\text{paroi}}^\perp(x)] + \cos(\theta)B_{z,\text{paroi}}^\perp(x)|$$

soit

$$B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{|d \sin(\theta) \cos(\phi - \phi_{\text{paroi}}) - (x - x_{\text{paroi}}) \cos(\phi_{\text{paroi}}) \cos(\theta)|}{[(x - x_{\text{paroi}}) \cos(\phi_{\text{paroi}})]^2 + d^2}. \quad (\text{B.2})$$

Nous pouvons comparer ce champ à celui mesuré au-dessus de l'un des bords de la piste utilisée pour la calibration,  $B_{NV}^{bd}(x)$ . On a avec nos notations, et en reprenant les équations du chapitre 3

$$B_{NV}^{bd}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{|d \sin(\theta) \cos(\phi) - x \cos(\theta)|}{x^2 + d^2},$$

ce qui correspond comme attendu à l'équation (B.2), sans la rotation d'angle  $\phi_{\text{paroi}}$  dans le plan, et divisée par un facteur 2. Pour exprimer plus clairement l'écart entre le champ mesuré au-dessus de la paroi et au-dessus de la piste de calibration, on peut réécrire

$$B_{NV,\text{paroi}}^\perp \left( \frac{x}{\cos(\phi_{\text{paroi}})} + x_{\text{paroi}} \right) = 2B_{NV}^{bd}(x) \Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}}(x), \quad (\text{B.3})$$

en définissant la fonction

$$\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}}(x) = \left| \frac{d \sin(\theta) \cos(\phi - \phi_{\text{paroi}}) - x \cos(\theta)}{d \sin(\theta) \cos(\phi) - x \cos(\theta)} \right|.$$

De cette façon, on peut évaluer simplement le champ attendu au-dessus d'une paroi de Bloch (où seule la composante  $\mathbf{B}^\perp$  existe), en fonction du champ mesuré au-dessus du bord de la piste de calibration. On peut ainsi mesurer l'impact des divers paramètres de l'expérience ( $d$ ,  $\theta$ ,  $\phi$  et  $\phi_{\text{paroi}}$ ) sur la précision de la mesure. Soulignons d'ailleurs que  $M_s$  n'apparaît pas dans l'estimation du champ. En particulier, si **la paroi est alignée avec le bord de la piste de calibration**, c'est-à-dire si  $\phi_{\text{paroi}} \approx 0$ , alors  $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}} \approx 1$  quelles que soient les conditions de l'expérience. En ne connaissant précisément aucun paramètre de l'expérience, la simple mesure du champ au-dessus de la piste de calibration permet alors de connaître  $B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x)$ , et donc de distinguer sans ambiguïté une déviation par rapport au champ d'une paroi de Bloch. C'est le point clé de notre méthode.

Dans les faits, la paroi n'est pas nécessairement alignée avec la piste de calibration, et  $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}}(x)$  dépend explicitement des paramètres ( $d$ ,  $\theta$ ,  $\phi$  et  $\phi_{\text{paroi}}$ ). Nous pouvons donc étudier les meilleures stratégies pour améliorer la précision de notre mesure, malgré l'incertitude sur chaque paramètre  $q_i \in \{d, \theta, \phi, \phi_{\text{paroi}}\}$ . On constate immédiatement que, du fait des dépendances en sinus et cosinus dans  $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}}$ , les meilleures conditions ( $\partial\Theta/\partial q_i \rightarrow 0$ ) sont atteintes quand :

1.  $\sin(\theta) \approx 0$ , *i.e.* l'axe du centre NV est perpendiculaire à la couche magnétique ( $\mathbf{u}_{NV} \parallel \hat{z}$ ). Dans ce cas en effet, toutes les rotations dans le plan sont équivalentes du point de vue du centre NV, et  $\phi_{\text{paroi}}$  n'a plus d'importance. Malheureusement, dans cette configuration, il ne nous est plus possible de lire le



déplacement Zeeman du centre NV. En effet, si  $\theta \approx 0$ , la projection sur l'axe  $\mathbf{u}_{NV}$  du champ micro-onde utilisé pour induire les transitions entre les niveaux de spin du centre NV est nulle.

2.  $\cos(\theta) \approx 0$  et  $\cos(\phi - \phi_{\text{paroi}}) \approx \cos(\phi) \approx 1$ . Dans ce cas, le centre NV est orienté dans le plan, et perpendiculairement à la piste de calibration, comme à la paroi de domaine. C'est cette configuration que nous nous efforçons donc d'atteindre dans nos expériences. Pour cela, la piste contenant la paroi de domaine étudiée est toujours perpendiculaire à la piste utilisée pour la calibration de l'expérience.

Au-delà du choix de la meilleure configuration pour la mesure du type de paroi, la définition de  $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}}$  et l'équation (B.3) nous permettent d'estimer de manière quantitative la précision de notre estimation du champ  $B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x)$ . L'incertitude sur cette estimation dépend de trois facteurs.

Le premier de ces facteurs est la précision sur la mesure du champ de la calibration  $B_{NV}^{bd}(x)$ . Celle-ci est définie par la précision du microscope à centre NV, qui est typiquement de  $\sim 10 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  (cf. chapitre 2). Comme généralement le temps d'acquisition est de l'ordre de la seconde, l'erreur sur les points expérimentaux est de l'ordre de  $10 \mu\text{T}$ . Pour diminuer au maximum l'influence de cette incertitude, on a donc intérêt à se rapprocher au maximum de l'échantillon, de sorte que les champs soient les plus forts possible et que l'erreur relative diminue. Pour les champs que l'on mesure typiquement, de l'ordre du mT, l'erreur sur la mesure du champ de bord  $B_{NV}^{bd}(x)$  conduit à une incertitude  $\epsilon_{B^{bd}}$  sur l'estimation finale de  $B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x)$  de l'ordre du pourcent.

Ensuite, viennent tous les paramètres  $q_i$  de l'expérience, qui vont entrer dans l'évaluation de  $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_{\text{paroi}}}$ . Pour évaluer leur impact sur la précision de l'estimation de  $B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x)$ , nous avons procédé de la même manière qu'au chapitre précédent : on fait varier le paramètre  $q_i \in \{d, \theta, \phi, \phi_{\text{paroi}}\}$  autour de sa valeur nominale  $\bar{q}_i$ , entre  $\bar{q}_i - \sigma_{q_i}$  et  $\bar{q}_i + \sigma_{q_i}$ , où  $\sigma_{q_i}$  est l'erreur sur  $q_i$ , et on estime l'erreur comme

$$\epsilon_{B^\perp/q_i} = \left| \frac{\Theta_{\{\bar{q}_i + \sigma_{q_i}\}} - \Theta_{\{\bar{q}_i - \sigma_{q_i}\}}}{2\Theta_{\{\bar{q}_i\}}} \right|,$$

tous les autres paramètres restant fixés à leur valeur nominale.

Enfin, le dernier facteur qui n'apparaît pas dans l'équation (B.3) provient du fait que la paroi n'est pas infinie comme supposée dans nos calculs analytiques. Au champ de la paroi infinie  $B_{NV,\text{paroi}}^\perp(x)$ , s'ajoute notamment le champ des bords de la piste qui la contient. Si cette piste a une certaine largeur  $l_{\text{piste}}$ , la méconnaissance de cette largeur peut conduire à une erreur  $\epsilon_{B^\perp/l}$  sur l'estimation du champ prédit. Suivant la valeur de  $l_{\text{piste}}$ , on s'approchera plus ou moins du modèle de la paroi infinie, et cette erreur sera plus ou moins significative. Par exemple, pour la paroi que nous allons étudier dans la section suivante, dans une piste en Ta|CoFeB|MgO de  $l_{\text{piste}} = 1500 \pm 30 \text{ nm}$ , on aura  $\epsilon_{B^\perp/l} < 0,1\%$  ce qui est négligeable. Pour les résultats que nous présenterons ensuite dans des pistes de Pt|Co|AlO<sub>x</sub> de largeur  $l_{\text{piste}} = 470 \pm 20 \text{ nm}$ , l'erreur  $\epsilon_{B^\perp/l}$  sera plus importante, de l'ordre de  $\sim 0,9\%$ .

Finalement, toutes ces sources d'incertitude étant indépendantes, la prédiction finale du champ d'une paroi de Bloch  $B_{NV}^\perp(x)$  sera entachée d'une erreur

$$\epsilon_{B_{NV}^\perp} = \sqrt{\epsilon_{B^{bd}}^2 + \epsilon_{B^\perp/l}^2 + \sum_i \epsilon_{B^\perp/q_i}^2} .$$

En utilisant la profonde similarité entre le champ utilisé pour calibrer l'expérience, sur le bord d'une piste, et le champ d'une paroi de Bloch, cette incertitude sera maintenue à des valeurs inférieures à  $\epsilon_{B_{NV}^\perp} \lesssim 3\%$ , alors même que les incertitudes sur des paramètres comme  $I_s$  ou  $d$  peuvent être plus importantes.

Il est à noter que dans les faits, nous n'utilisons pas directement l'équation (B.3) pour prédire le champ d'une paroi, mais une simulation micromagnétique, dans laquelle nous injectons notamment le paramètre  $M_s = I_s/t$ . Puis nous calculons le champ à une distance  $d$  de la couche magnétique. Cependant, pour l'estimation des incertitudes, nous insistons sur le fait que la donnée du champ de calibration sur un bord  $B_{NV}^{bd}(x)$  est équivalente à la donnée de  $I_s$  et  $d$ . C'est pourquoi nous avons choisi de considérer directement  $B_{NV}^{bd}(x)$  pour expliciter la précision de notre mesure.

**Précision sur l'estimation de la composante  $\mathbf{B}_{\text{paroi}}^\parallel$**  Dans le cas de la composante planaire de l'aimantation, il n'y a plus de relation simple entre le champ du bord de piste, décrit au chapitre 3, et le champ issu de la composante planaire de la paroi, décrit par les équations (4.5). Afin d'évaluer l'incertitude sur l'estimation de  $B_{NV}^\parallel = \mathbf{B}_{\text{paroi}}^\parallel \cdot \mathbf{u}_{NV}$ , nous devons donc considérer l'impact de tous les paramètres qui entrent dans les équations (4.5). Cependant, dans la pratique, la principale source d'erreur est de loin l'imprécision sur la largeur de la paroi  $\pi\Delta_B = \pi\sqrt{A_{\text{éch}}K_{\text{eff}}}$ . En effet, tandis que l'anisotropie effective  $K_{\text{eff}}$  est relativement simple à obtenir avec une bonne précision, la constante d'échange  $A_{\text{éch}}$  est très délicate à mesurer dans les couches ultra-minces. Dans la pratique, sa valeur est déduite de celles de couches plus épaisses, et pour les échantillons de Co et CoFeB que nous étudierons,  $A_{\text{éch}}$  est estimée entre 10 et 30 pJ/m (voir par exemple [20,21]). En termes d'incertitude sur la largeur de paroi, ceci se traduit par une erreur de l'ordre de  $\epsilon_{\Delta_B} = \sigma_{\Delta_B}/\Delta_B \approx 25\%$ , qui domine très largement la contribution des autres paramètres. Nous considérerons donc que cette erreur est approximativement l'erreur commise sur l'estimation du champ produit par la composante planaire de l'aimantation, *i.e.*  $\epsilon_{B_{NV}^\parallel} \approx \epsilon_{\Delta_B}$ .

**Précision sur l'estimation du champ total de la paroi  $\mathbf{B}_{NV,\text{paroi}}$**  Finalement, le champ total de la paroi étant donné, pour un angle  $\psi$  de l'aimantation planaire, par

$$B_{NV}(x) = B_{NV}^\perp(x) + \cos(\psi)B_{NV}^\parallel(x) ,$$

l'incertitude totale de notre estimation, est autour du maximum du champ, donnée par

$$\epsilon_{B_{NV}} = \sqrt{\left(\epsilon_{B_{NV}^\parallel}\right)^2 + \left(\cos(\psi)\epsilon_{B_{NV}^\parallel}\right)^2} .$$

Les nappes colorées, dans les figures 4.9, 4.10, 4.11, 4.12 et 4.13 du chapitre 4, correspondent à cette incertitude relative. Autrement dit, elles englobent les valeurs de champ comprises entre  $(1 - \epsilon_{B_{NV}}) B_{NV}(x)$  et  $(1 + \epsilon_{B_{NV}}) B_{NV}(x)$ . Bien entendu, ceci n'est valide que pour les valeurs de champ magnétique suffisamment grandes devant le bruit de la mesure par microscopie NV. Quand le champ tend vers 0, le bruit de la mesure fait en réalité diverger  $\epsilon_{B_{NV}}$ .

## B.2 Comparaison entre simulation micromagnétique et profil analytique pour l'aimantation

Dans cette partie nous allons étudier la possibilité de calculer le champ magnétique à partir d'une expression analytique pour l'aimantation, plus simple que le résultat d'une simulation quasi-exacte obtenue avec un code de micromagnétisme.

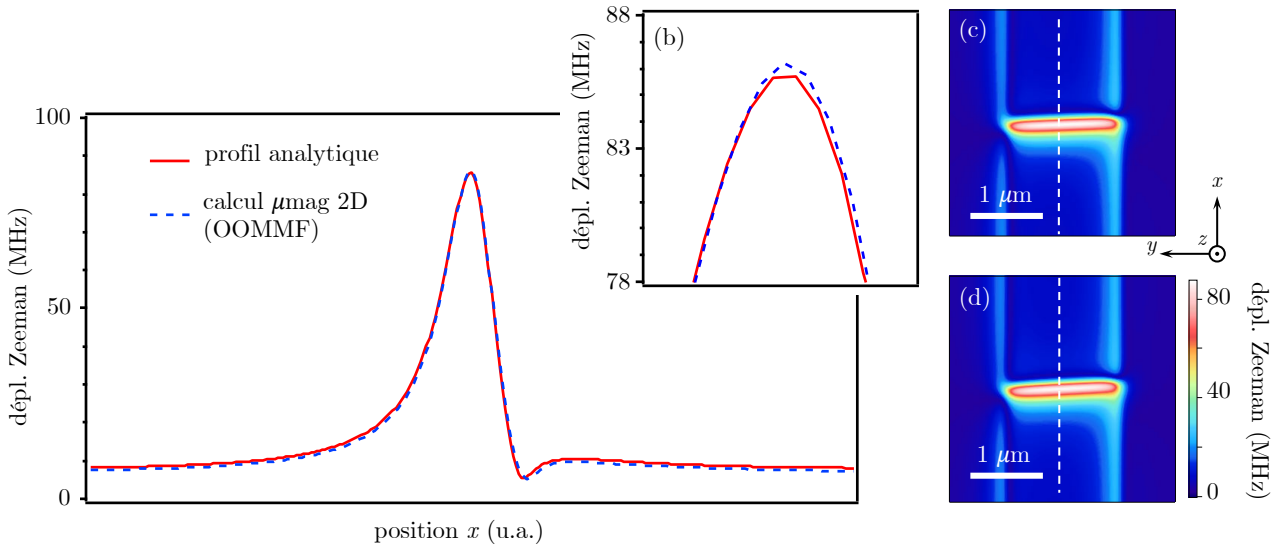


FIGURE B.2 : **Comparaison entre simulation micromagnétique et utilisation d'un profil analytique pour l'aimantation.** (a) Coupes correspondant aux traits pointillés dans les cartographies calculées (c) et (d). (b) Agrandissement autour du maximum, montrant un écart inférieur au pourcent entre les champs calculés dans les deux situations. (c) Calcul du déplacement Zeeman dans les conditions de l'expérience sur l'échantillon de Ta|CoFeB|MgO [cf. chapitre 4], à partir de l'aimantation calculée avec OOMMF. (d) Cartographie Zeeman, calculée dans les mêmes conditions, à partir d'un profil analytique pour l'aimantation. Les deux configurations correspondent à une paroi de Néel de chiralité gauche.

La figure B.2 compare deux résultats de simulation de cartographies du déplacement Zeeman, au-dessus de la paroi de Ta|CoFeB|MgO étudiée au chapitre 4. La première cartographie, en figure B.2(c), est calculée à partir d'un profil d'aimantation quasi-exact pour une paroi de Néel, obtenu avec OOMMF introduisant la contribution de l'interaction DM [190] avec  $D_{DM} = 0,5 \text{ mJ/m}^2$ . La seconde cartographie, en figure B.2(d), correspond au

calcul du déplacement Zeeman à partir d'une aimantation décrite analytiquement, par

$$\mathbf{M}_{\parallel} = M_s \left[ \tanh \left( \frac{x - x_0(y)}{\Delta_B} \right) \mathbf{u}_z + \frac{\cos(\psi - \psi_0(y)) \mathbf{u}_x + \sin(\psi - \psi_0(y)) \mathbf{u}_y}{\cosh \left( \frac{x - x_0(y)}{\Delta_B} \right)} \right].$$

Le profil  $x_0(y)$  de la paroi, ainsi que son orientation locale  $\psi_0(y)$  sont définis de façon à ce que la paroi présente un angle de  $2^\circ$  par rapport à l'axe  $\hat{y}$ , comme dans la simulation OOMMF. Dans le profil analytique, la paroi est également une paroi de Néel, soit  $\psi = \pi$ . Le calcul du champ de fuite est effectué suivant la procédure décrite dans l'annexe A.

Comparer les deux méthodes de calcul sur une paroi de Néel permet notamment de vérifier que l'interaction DM ne modifie pas trop fortement l'aimantation de la paroi.

Les deux résultats des calculs sont comparés en figure B.2(a) et (b) sur des coupes, correspondant aux lignes pointillées dans les figures B.2(c) et (d). La comparaison indique que le profil analytique n'induit pas d'erreur notable, alors même que la largeur de la paroi est très importante ( $\pi\Delta_B \sim 60$  nm). La différence au niveau du maximum du champ est en effet inférieure au pourcent, ce qui est bien plus faible que l'imprécision de nos estimations de champ par ailleurs. C'est pourquoi nous avons simplement utilisé un profil analytique, pour l'étude des échantillons du groupe de M. Hayashi à la fin du chapitre 4.

# Bibliographie

- [1] Koomey, J. G. *Worldwide electricity used in data centers*. Environ. Res. Lett. **3**(3) :034008 (2008)
- [2] Allwood, D. A., *et al.* *Magnetic Domain-Wall Logic*. Science (80-. ). **309**(5741) :1688–1692 (2005)
- [3] Kang, W., *et al.* *Spintronics : Emerging Ultra-Low-Power Circuits and Systems beyond MOS Technology*. ACM J. Emerg. Technol. Comput. Syst. **12**(2) :16 (2015)
- [4] Parkin, S. S. P., Yang, S.-H. *Memory on the racetrack*. Nat. Nanotechnol. **10**(3) :195–198 (2015)
- [5] Parkin, S. S. P., Hayashi, M., Thomas, L. *Magnetic domain-wall racetrack memory*. Science **320**(5873) :190–4 (2008)
- [6] Ralph, D. C., Stiles, M. D. *Spin transfer torques*. J. Magn. Magn. Mater. **320**(7) :1190–1216 (2008)
- [7] Brataas, A., Kent, A. D., Ohno, H. *Current-induced torques in magnetic materials*. Nat. Publ. Gr. **11**(5) :372–381 (2012)
- [8] Khvalkovskiy, A. V., *et al.* *Matching domain-wall configuration and spin-orbit torques for efficient domain-wall motion*. Phys. Rev. B **87**(2) :020402 (2013)
- [9] Brataas, A., Hals, K. M. D. *Spin-orbit torques in action*. Nat. Nanotechnol. **9**(2) :86–88 (2014)
- [10] Thiaville, A., *et al.* *Dynamics of Dzyaloshinskii domain walls in ultrathin magnetic films*. Europhys. Lett. **100**(5) :57002 (2012)
- [11] Miron, I. M., *et al.* *Fast current-induced domain-wall motion controlled by the Rashba effect*. Nat. Mater. **10**(6) :419–423 (2011)
- [12] Liu, L., *et al.* *Current-Induced Switching of Perpendicularly Magnetized Magnetic Layers Using Spin Torque from the Spin Hall Effect* **096602**(August) :1–5 (2012)
- [13] Martinez, E., Emori, S., Beach, G. S. D. *Current-driven domain wall motion along high perpendicular anisotropy multilayers : The role of the Rashba field, the spin Hall effect, and the Dzyaloshinskii-Moriya interaction*. Appl. Phys. Lett. **103**(7) :072406 (2013)
- [14] Rondin, L., *et al.* *Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond*. Rep. Prog. Phys. **77**(5) :056503 (2014)

- [15] Parkin, S. S. P., Kronmüller, H. *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*. John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK (2007)
- [16] Hubert, A., Schäfer, R. *Magnetic Domains*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (1998)
- [17] Skomski, R. *Simple Models of Magnetism*. Oxford University Press (2008)
- [18] Brown, W. *Theory of the approach to magnetic saturation*. Phys. Rev. (44) :736–743 (1940)
- [19] du Trémolet de Lacheisserie, E. *Magnétisme - Volume 1, Fondements* (1999)
- [20] Yamanouchi, M., et al. *Domain Structure in CoFeB Thin Films With Perpendicular Magnetic Anisotropy*. IEEE Magn. Lett. **2** :3000304–3000304 (2011)
- [21] Eyrich, C. *Exchange Stiffness in Thin-Film Cobalt Alloys*. Master thesis (2012)
- [22] Di, K., et al. *Asymmetric spin-wave dispersion due to Dzyaloshinskii-Moriya interaction in an ultrathin Pt/CoFeB film*. Appl. Phys. Lett. **106**(5) :052403 (2015)
- [23] Fruchart, O. *Lecture notes on Nanomagnetism* (2015)
- [24] Osborn, J. A. *Demagnetizing factors of the general ellipsoid*. Phys. Rev. **67**(11-12) :351–357 (1945)
- [25] Aharoni, A. *Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms*. J. Appl. Phys. **83**(1998) :3432–3434 (1998)
- [26] Weiss, P. *L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique*. J. Phys. Théorique Appliquée **6**(1) :661–690 (1907)
- [27] Hámos, L. v., Thiessen, P. a. *Über die Sichtbarmachung von Bezirken verschiedenen ferromagnetischen Zustandes fester Körper*. Zeitschrift für Phys. **71**(7) :442–444 (1931)
- [28] Bitter, F. *On inhomogeneities in the magnetization of ferromagnetic materials [1]*. Phys. Rev. **38**(10) :1903–1905 (1931)
- [29] Berger, L. *Low-field magnetoresistance and domain drag in ferromagnets*. J. Appl. Phys. **49**(3) :2156–2161 (1978)
- [30] Freitas, P. P., Berger, L. *Observation of s-d exchange force between domain walls and electric current in very thin Permalloy films*. J. Appl. Phys. **57**(4) :1266–1269 (1985)
- [31] Chanthbouala, A., et al. *Vertical-current-induced domain-wall motion in MgO-based magnetic tunnel junctions with low current densities*. Nat. Phys. **7**(8) :626–630 (2011)
- [32] Ravelosona, D., et al. *Nanometer Scale Observation of High Efficiency Thermally Assisted Current-Driven Domain Wall Depinning*. Phys. Rev. Lett. **95**(11) :117203 (2005)
- [33] Fukami, S., et al. *Micromagnetic analysis of current driven domain wall motion in nanostrips with perpendicular magnetic anisotropy*. J. Appl. Phys. **103**(7) :10–13 (2008)
- [34] Miron, I. M., et al. *Current-driven spin torque induced by the Rashba effect in a ferromagnetic metal layer*. Nat. Mater. **9**(3) :230–234 (2010)
- [35] Zhang, Y., et al. *Perpendicular-magnetic-anisotropy CoFeB racetrack memory*. J. Appl. Phys. **111**(9) (2012)

- [36] Zhang, Y., *et al.* *Current induced perpendicular-magnetic-anisotropy racetrack memory with magnetic field assistance* **032409**(2014) :1–6
- [37] Neel, M. L. *Anisotropie Magnetique Superficielle Et Superstructures D'Orientation.* Le J. Phys. Le Radium **15** :225–239 (1954)
- [38] Tarasenko, S., *et al.* *Bloch wall dynamics in ultrathin ferromagnetic films.* J. Magn. Magn. Mater. **189**(1) :19–24 (1998)
- [39] Engel, B., *et al.* *Interface magnetic anisotropy in epitaxial superlattices.* Phys. Rev. Lett. **67**(14) :1910–1913 (1991)
- [40] Ikeda, S., *et al.* *A perpendicular-anisotropy CoFeB-MgO magnetic tunnel junction.* Nat. Mater. **9**(9) :721–724 (2010)
- [41] Bloch, F. *Zur Theorie des Austauschproblems und der Remanenzerscheinung der Ferromagnetika.* Zeitschrift für Phys. **74**(5-6) :295–335 (1932)
- [42] Néel, L. *Energies des parois de Bloch dans les couches minces.* Comptes Rendus l'Académie des Sci. **241** :533 (1955)
- [43] Néel, L. *Parois dans les films minces.* Le J. Phys. Colloq. **29**(C2) :C2–87–C2–94 (1968)
- [44] Koyama, T., *et al.* *Observation of the intrinsic pinning of a magnetic domain wall in a ferromagnetic nanowire.* Nat. Mater. **10**(3) :194–7 (2011)
- [45] Pizzini, S., *et al.* *Chirality-induced asymmetric magnetic nucleation in Pt/Co/AlOx ultrathin microstructures.* Phys. Rev. Lett. **113**(4) :1–5 (2014)
- [46] Němec, P., *et al.* *Experimental observation of the optical spin transfer torque.* Nat. Phys. **8**(5) :411–415 (2012)
- [47] Durkan, C., Shvets, I. V., Lodder, J. C. *Observation of magnetic domains using a reflection-mode scanning near-field optical microscope.* Appl. Phys. Lett. **70**(10) :1323–1325 (1997)
- [48] Petersen, B. L., *et al.* *Kerr-rotation imaging in scanning near-field optical microscopy using a modified Sagnac interferometer.* Appl. Phys. Lett. **73**(4) :538–540 (1998)
- [49] Meyer, G., *et al.* *In situ near-field imaging of magnetic domain patterns in ultrathin iron films.* Appl. Phys. Lett. **83**(7) :1394–1396 (2003)
- [50] Schoenmaker, J., *et al.* *Imaging of domain wall motion in small magnetic particles through near-field microscopy.* Appl. Phys. Lett. **88**(6) :6–8 (2006)
- [51] Schütz, G., *et al.* *Absorption of circularly polarized x rays in iron.* Phys. Rev. Lett. **58**(7) :737–740 (1987)
- [52] Schütz, G., *et al.* *Spin-dependent photoabsorption at the L-edges of ferromagnetic Gd and Tb metal.* Zeitschrift für Phys. B Condens. Matter **73**(1) :67–75 (1988)
- [53] Stöhr, J. *Exploring the microscopic origin of magnetic anisotropies with X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) spectroscopy.* J. Magn. Magn. Mater. **200**(1) :470–497 (1999)

- [54] Vogel, J. *Dichroïsme Magnétique des rayons X : de la détermination quantitative des moments magnétiques à l'imagerie de la dynamique de l'aimantation* (2006)
- [55] Fischer, P., Fadley, C. S. *Probing nanoscale behavior of magnetic materials with soft X-ray spectromicroscopy*. *Nanotechnol. Rev.* **1**(2012) :— (2011)
- [56] Eisebitt, S., *et al.* *Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray*. *Nature* **432**(December) :885–888 (2004)
- [57] Robertson, M. J., *et al.* *Quantitative x-ray magnetic circular dichroism mapping with high spatial resolution full-field magnetic transmission soft x-ray spectro-microscopy*. *J. Appl. Phys.* **117**(17) :17D145 (2015)
- [58] Schneider, C. M., Schönhense, G. *Investigating surface magnetism by means of photoexcitation electron emission microscopy*. *Reports Prog. Phys.* **65**(12) :1785–1839 (2002)
- [59] Choi, J., *et al.* *Magnetic bubble domain phase at the spin reorientation transition of ultrathin Fe/Ni/Cu(001) film*. *Phys. Rev. Lett.* **98**(20) :18–21 (2007)
- [60] Kronseder, M., *et al.* *Real-time observation of domain fluctuations in a two-dimensional magnetic model system*. *Nat. Commun.* **6** :6832 (2015)
- [61] Tusche, C., *et al.* *Spin resolved photoelectron microscopy using a two-dimensional spin-polarizing electron mirror*. *Appl. Phys. Lett.* **99**(3) :1–4 (2011)
- [62] Barnes, J., *et al.* *Implementation of scanning electron microscopy with polarization analysis using high-efficiency retarding-potential Mott polarimeters*. *Rev. Sci. Instrum.* **70**(1) :246–247 (1999)
- [63] Frömter, R., *et al.* *Optimizing a low-energy electron diffraction spin-polarization analyzer for imaging of magnetic surface structures*. *Rev. Sci. Instrum.* **82**(3) (2011)
- [64] Abraham, D., Hopster, H. *Magnetic Probing Depth in Spin-Polarized Second-Electron Spectroscopy*. *Phys. Rev. Lett.* **58**(13) :1352–1354 (1987)
- [65] Koike, K. *Spin-polarized scanning electron microscopy*. *J. Electron Microsc.* (Tokyo). **62**(1) :177–191 (2013)
- [66] Kohashi, T., Konoto, M., Koike, K. *A spin rotator for spin-polarized scanning electron microscopy*. *Rev. Sci. Instrum.* **75**(6) :2003–2007 (2004)
- [67] Allenspach, R., Bischof, a. *Magnetization direction switching in Fe/Cu(100) epitaxial films : Temperature and thickness dependence*. *Phys. Rev. Lett.* **69**(23) :3385–3388 (1992)
- [68] Konoto, M., *et al.* *Direct imaging of temperature-dependent layered antiferromagnetism of a magnetic oxide*. *Phys. Rev. Lett.* **93**(10) :1–4 (2004)
- [69] Beyersdorff, B., *et al.* *Thermal effects in spin-torque assisted domain wall depinning*. *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **86**(18) :1–9 (2012)
- [70] Reeve, R. M., *et al.* *Magnetic domain structure of La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> thin-films probed at variable temperature with scanning electron microscopy with polarization analysis*. *Appl. Phys. Lett.* **102**(12) :0–4 (2013)



- [71] Rougemaille, N., Schmid, A. K. *Magnetic imaging with spin-polarized low-energy electron microscopy*. Eur. Phys. J. Appl. Phys. **50**(2) :20101 (2010)
- [72] Chen, G., *et al.* *Tailoring the chirality of magnetic domain walls by interface engineering*. Nat. Commun. **4** :2671 (2013)
- [73] Chen, G., *et al.* *Novel Chiral Magnetic Domain Wall Structure in Fe/Ni/Cu(001) Films*. Phys. Rev. Lett. **110**(17) :177204 (2013)
- [74] Chen, G., *et al.* *Ternary superlattice boosting interface-stabilized magnetic chirality*. Appl. Phys. Lett. **106**(6) :062402 (2015)
- [75] Chapman, J. N., Scheinfein, M. R. *Transmission electron microscopies of magnetic microstructures*. J. Magn. Magn. Mater. **200**(1) :729–740 (1999)
- [76] Benitez, M. J., *et al.* *Magnetic microscopy of topologically protected homochiral domain walls in an ultrathin perpendicularly magnetized Co film* **1** :1–6 (2015)
- [77] Shindo, D., Murakami, Y. *Electron holography of magnetic materials*. J. Phys. D. Appl. Phys. **41**(18) :183002 (2008)
- [78] Midgley, P. A., Dunin-Borkowski, R. E. *Electron tomography and holography in materials science*. Nat. Mater. **8**(4) :271–280 (2009)
- [79] Zhang, D., *et al.* *Domain structure and perpendicular magnetic anisotropy in CoFe/Pd multilayers using off-axis electron holography*. J. Magn. Magn. Mater. **388** :16–21 (2015)
- [80] Rippard, W. H., Buhrman, R. A. *Ballistic electron magnetic microscopy : Imaging magnetic domains with nanometer resolution*. Appl. Phys. Lett. **75**(7) :1001 (1999)
- [81] Rippard, W., Buhrman, R. *Spin-Dependent Hot Electron Transport in Co/Cu Thin Films* (2000)
- [82] Kaiser, W. J., Bell, L. D. *Direct investigation of subsurface interface electronic structure by ballistic-electron-emission microscopy*. Phys. Rev. Lett. **60**(14) :1406–1409 (1988)
- [83] Bellec, A., *et al.* *Domain wall structure in magnetic bilayers with perpendicular anisotropy*. EPL (Europhysics Lett. **91**(1) :17009 (2010)
- [84] Wiesendanger, R. *Spin mapping at the nanoscale and atomic scale*. Rev. Mod. Phys. **81**(4) :1495–1550 (2009)
- [85] Kubetzka, A., *et al.* *Spin-polarized scanning tunneling microscopy study of 360 degrees walls in an external magnetic field*. Phys. Rev. B **67**(2) :020401 (2003)
- [86] Romming, N., *et al.* *Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions*. Science (80-. ). **341**(6146) :636–639 (2013)
- [87] De Abril, O., Del Carmen Sánchez, M., Aroca, C. *The effect of the in-plane demagnetizing field on films with weak perpendicular magnetic anisotropy*. J. Appl. Phys. **100**(6) :0–8 (2006)
- [88] Veschunov, I. S., *et al.* *Visualization of ferromagnetic domains in Er Ni<sub>2</sub> B<sub>2</sub> C single crystals : Weak ferromagnetism and its coexistence with superconductivity*. Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **76**(17) :2–6 (2007)

- [89] Kostyshyn, B., *et al.* *External Fields from Domain Walls of Cobalt Film*. J. Appl. Phys. **31**(5) :772 (1960)
- [90] Koehler, H., Kostyshyn, B., Ku, T. C. *A Note on Hall Probe Resolution [Letter to the Editor]*. IBM J. Res. Dev. **5**(4) :326–327 (1961)
- [91] Chang, A. M., *et al.* *Scanning Hall probe microscopy*. Appl. Phys. Lett. **61**(16) :1974–1976 (1992)
- [92] Guikema, J. W. *Scanning Hall Probe Microscopy of Magnetic Vortices in Very Underdoped Yttrium Barium Copper Oxide* **22161**(March) (2004)
- [93] Hicks, C. W., *et al.* *Noise characteristics of 100 nm scale GaAs-AlxGa(1-x) As scanning Hall probes*. Appl. Phys. Lett. **90**(13) :133512 (2007)
- [94] Pisana, S., *et al.* *Tunable nanoscale graphene magnetometers*. Nano Lett. **10**(1) :341–346 (2010)
- [95] Mohammed, H. A., Bending, S. J. *Fabrication of nanoscale Bi Hall sensors by lift-off techniques for applications in scanning probe microscopy*. Semicond. Sci. Technol. **29**(8) :085007 (2014)
- [96] Veauvy, C., Hasselbach, K., Mailly, D. *Scanning  $s$ -superconduction quantum interference device force microscope*. Rev. Sci. Instrum. **73**(11) :3825 (2002)
- [97] Nagel, J., *et al.* *Superconducting quantum interference devices with submicron Nb/HfTi/Nb junctions for investigation of small magnetic particles*. Appl. Phys. Lett. **99**(3) :1–4 (2011)
- [98] Russo, R., *et al.* *Nanoparticle magnetization measurements by a high sensitive nano-superconducting quantum interference device*. Appl. Phys. Lett. **101**(12) :1–5 (2012)
- [99] Finkler, A., *et al.* *Self-Aligned Nanoscale SQUID on a Tip*. Nano Lett. **10**(3) :1046–1049 (2010)
- [100] Vasyukov, D., *et al.* *A scanning superconducting quantum interference device with single electron spin sensitivity*. Nat. Nanotechnol. **8**(9) :639–644 (2013)
- [101] Metaxas, P. J., *et al.* *Spatially periodic domain wall pinning potentials : Asymmetric pinning and dipolar biasing*. J. Appl. Phys. **113**(7) (2013)
- [102] García, J. M., *et al.* *Quantitative interpretation of magnetic force microscopy images from soft patterned elements*. Appl. Phys. Lett. **79**(5) :656–658 (2001)
- [103] Eaton, P., West, P. *Atomic Force Microscopy*. Oxford University Press (2010)
- [104] Deng, Z., *et al.* *Metal-coated carbon nanotube tips for magnetic force microscopy*. Appl. Phys. Lett. **85**(25) :6263–6265 (2004)
- [105] Freeman, M. R., Choi, B. C. *Advances in magnetic microscopy*. Science **294**(5546) :1484–1488 (2001)
- [106] Shinjo, T. *Magnetic Vortex Core Observation in Circular Dots of Permalloy*. Science (80- ). **289**(5481) :930–932 (2000)
- [107] Rawlings, C., Durkan, C. *Performing quantitative MFM measurements on soft magnetic nanostructures*. Nanotechnology **23**(45) :455701 (2012)
- [108] Rawlings, C., Durkan, C. *The inverse problem in magnetic force microscopy—inferring sample magnetization from MFM images*. Nanotechnology **24**(30) :305705 (2013)

- [109] Zaitsev, A. M. *Optical Properties of Diamond* (2001)
- [110] Gaebel, T., *et al.* *Photochromism in single nitrogen-vacancy defect in diamond*. *Appl. Phys. B* **82**(2) :243–246 (2006)
- [111] Santori, C., *et al.* *Vertical distribution of nitrogen-vacancy centers in diamond formed by ion implantation and annealing*. *Phys. Rev. B* **79**(12) :125313 (2009)
- [112] Rondin, L. *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant*. Thèse de Doctorat (2012)
- [113] Orrit, M., Bernard, J. *Single pentacene molecules detected by fluorescence excitation in a p-terphenyl crystal*. *Phys. Rev. Lett.* **65**(21) :2716–2719 (1990)
- [114] Nirmal, M., *et al.* *Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals* (1996)
- [115] Moerner, W. E., Orrit, M. *Illuminating single molecules in condensed matter*. *Science* **283**(5408) :1670–1676 (1999)
- [116] Hoogenboom, J. P., *et al.* *Power-Law Blinking in the Fluorescence of Single Organic Molecules*. *Chem-PhysChem* **8**(6) :823–833 (2007)
- [117] Mahler, B., *et al.* *Towards non-blinking colloidal quantum dots*. *Nat. Mater.* **7**(8) :659–664 (2008)
- [118] Gruber, A., *et al.* *Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers*. *Science* (80-. ). **276**(5321) :2012–2014 (1997)
- [119] Beveratos, A., *et al.* *Single Photon Quantum Cryptography*. *Phys. Rev. Lett.* **89**(18) :187901 (2002)
- [120] Jacques, V., *et al.* *Experimental Realization of Wheeler's Delayed-Choice Gedanken Experiment*. *Science* (80-. ). **315**(5814) :966–968 (2007)
- [121] Hui, Y. Y., Cheng, C.-L., Chang, H.-C. *Nanodiamonds for optical bioimaging*. *J. Phys. D. Appl. Phys.* **43**(37) :374021 (2010)
- [122] Mohan, N., *et al.* *In Vivo Imaging and Toxicity Assessments of Fluorescent Nanodiamonds in Caenorhabditis elegans*. *Nano Lett.* **10**(9) :3692–3699 (2010)
- [123] Jelezko, F., *et al.* *Observation of coherent oscillations in a single electron spin*. *Phys. Rev. Lett.* **92**(7) :076401 (2004)
- [124] Hanson, R., Awschalom, D. D. *Coherent manipulation of single spins in semiconductors*. *Nature* **453**(7198) :1043–1049 (2008)
- [125] Pfaff, W., *et al.* *Demonstration of entanglement-by-measurement of solid-state qubits*. *Nat. Phys.* **9**(1) :29–33 (2012)
- [126] Childress, L., Hanson, R. *Diamond NV centers for quantum computing and quantum networks*. *MRS Bull.* **38**(02) :134–138 (2013)
- [127] Hensen, B., *et al.* *Experimental loophole-free violation of a Bell inequality using entangled electron spins separated by 1.3 km* **2** :1–8
- [128] Robledo, L., *et al.* *Spin dynamics in the optical cycle of single nitrogen-vacancy centres in diamond*. *New J. Phys.* **13** :0–11 (2011)

- [129] Dréau, A., *et al.* *Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity.* Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **84**(19) :1–8 (2011)
- [130] Doherty, M. W., *et al.* *Theory of the ground-state spin of the NV - center in diamond.* Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **85**(20) :1–21 (2012)
- [131] Van Oort, E., Glasbeek, M. *Electric-field-induced modulation of spin echoes of N-V centers in diamond.* Chem. Phys. Lett. **168**(6) :529–532 (1990)
- [132] Dolde, F., *et al.* *Sensing electric fields using single diamond spins.* Nat. Phys. **7**(6) :459–463 (2011)
- [133] Tetienne, J.-P., *et al.* *Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond : An application to qualitative all-optical magnetic imaging.* New J. Phys. **14** (2012)
- [134] Rondin, L., *et al.* *Stray-field imaging of magnetic vortices with a single diamond spin.* Nat. Commun. **4**(May) :2279 (2013)
- [135] Chernobrod, B. M., Berman, G. P. *Spin microscope based on optically detected magnetic resonance.* J. Appl. Phys. **97**(1) :2003–2006 (2005)
- [136] Degen, C. L. *Scanning magnetic field microscope with a diamond single-spin sensor.* Appl. Phys. Lett. **92**(24) (2008)
- [137] Balasubramanian, G., *et al.* *Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions.* Nature **455**(7213) :648–651 (2008)
- [138] Rondin, L., *et al.* *Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer.* Appl. Phys. Lett. **100**(15) (2012)
- [139] Tetienne, J.-P. *A magnetic field microscope based on the nitrogen-vacancy defect in diamond : realisation and application to the study of ultrathin ferromagnetic films.* Thèse de Doctorat (2014)
- [140] Akiyama, T., *et al.* *Symmetrically arranged quartz tuning fork with soft cantilever for intermittent contact mode atomic force microscopy.* Rev. Sci. Instrum. **74**(1) :112 (2003)
- [141] Tetienne, J.-P., *et al.* *Quantitative stray field imaging of a magnetic vortex core.* Phys. Rev. B **88**(21) :214408 (2013)
- [142] Rondin, L., *et al.* *Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds.* Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **82**(11) :1–5 (2010)
- [143] Cuche, A., *et al.* *Diamond nanoparticles as photoluminescent nanoprobe for biology and near-field optics.* J. Lumin. **129**(12) :1475–1477 (2009)
- [144] Cuche, A., *et al.* *"Deterministic" quantum plasmonics.* Nano Lett. **10**(11) :4566–4570 (2010)
- [145] Beveratos, A. *Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés individuels dans le diamant ; application à la cryptographie quantique.* Thèse de Doctorat (2005)
- [146] Doherty, M. W., *et al.* *The nitrogen-vacancy colour centre in diamond.* Phys. Rep. **528**(1) :1–45 (2013)

- [147] Maletinsky, P., *et al.* *A robust, scanning quantum system for nanoscale sensing and imaging.* Nat. Nanotechnol. **7**(5) :320–324 (2011)
- [148] Barkhausen, H. *Zwei mit Hilfe der neuen Verstärker entdeckte Erscheinungen.* Phys. Z. **20** :401–403 (1919)
- [149] Tetienne, J.-P., *et al.* *Nanoscale imaging and control of domain-wall hopping with a nitrogen-vacancy center microscope.* Science **344**(6190) :1366–9 (2014)
- [150] Burrowes, C., *et al.* *Low depinning fields in Ta-CoFeB-MgO ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy.* Appl. Phys. Lett. **103**(18) :2011–2016 (2013)
- [151] Devolder, T., *et al.* *Damping of Co<sub>x</sub>Fe<sub>80-x</sub>B<sub>20</sub> ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy.* Appl. Phys. Lett. **102**(2) :022407 (2013)
- [152] Toyli, D. M., *et al.* *Fluorescence thermometry enhanced by the quantum coherence of single spins in diamond.* Proc. Natl. Acad. Sci. **110**(21) :8417–8421 (2013)
- [153] Neumann, P., *et al.* *Multipartite entanglement among single spins in diamond.* Science **320**(5881) :1326–1329 (2008)
- [154] Acosta, V., *et al.* *Temperature dependence of the nitrogen-vacancy magnetic resonance in diamond.* Phys. Rev. Lett. **104**(7) :1–4 (2010)
- [155] Lamperti, A., *et al.* *Interface width evaluation in thin layered CoFeB/MgO multilayers including Ru or Ta buffer layer by X-ray reflectivity.* Thin Solid Films **533**(2013) :79–82 (2013)
- [156] Chappert, C. *Planar Patterned Magnetic Media Obtained by Ion Irradiation.* Science (80-. ). **280**(5371) :1919–1922 (1998)
- [157] Ney, A., *et al.* *Limitations of measuring small magnetic signals of samples deposited on a diamagnetic substrate.* J. Magn. Magn. Mater. **320**(23) :3341–3346 (2008)
- [158] Garcia, M. a., *et al.* *Sources of experimental errors in the observation of nanoscale magnetism.* J. Appl. Phys. **105**(1) (2009)
- [159] Pereira, L. M. C., *et al.* *Practical limits for detection of ferromagnetism using highly sensitive magnetometry techniques.* J. Phys. D. Appl. Phys. **44**(21) :215001 (2011)
- [160] Takeda, K., *et al.* *Absolute quantification of the magnetization of individual micron-sized magnets using a high-temperature superconductor micro-SQUID magnetometer.* Supercond. Sci. Technol. **23**(4) :045006 (2010)
- [161] Vernier, N., *et al.* *Measurement of magnetization using domain compressibility in CoFeB films with perpendicular anisotropy.* Appl. Phys. Lett. **104**(12) :1–5 (2014)
- [162] Harzer, J. V., *et al.* *Magnetic properties of Co/Pd multilayers determined by Brillouin light scattering and SQUID magnetometry.* J. Appl. Phys. **69**(4) :2448–2454 (1991)
- [163] Devolder, T., *et al.* *Irradiation-induced tailoring of the magnetism of CoFeB/MgO ultrathin films.* J. Appl. Phys. **113**(20) :20–24 (2013)
- [164] Ziegler, J. F. *SRIM* <http://www.srim.org/>

- 
- [165] Hingant, T., *et al.* *Measuring the Magnetic Moment Density in Patterned Ultrathin Ferromagnets with Submicrometer Resolution.* Phys. Rev. Appl. **4**(1) :014003 (2015)
- [166] Landau, L., Lifshitz, E. *on the Theory of the Dispersion of Magnetic Permeability in Ferromagnetic Bodies.* Phys. Zeitsch. der Sow. **8** :153–169 (1935)
- [167] Gilbert, T. *Classics in Magnetism A Phenomenological Theory of Damping in Ferromagnetic Materials.* IEEE Trans. Magn. **40**(6) :3443–3449 (2004)
- [168] Thiaville, A., *et al.* *Micromagnetic understanding of current-driven domain wall motion in patterned nanowires* **990** :5 (2004)
- [169] Mougin, A., *et al.* *Domain wall mobility, stability and Walker breakdown in magnetic nanowires.* Europhys. Lett. **78**(5) :57007 (2007)
- [170] Tatara, G., Kohno, H. *Theory of Current-Driven Domain Wall Motion : Spin Transfer versus Momentum Transfer.* Phys. Rev. Lett. **92**(8) :086601 (2004)
- [171] Zhang, S., Li, Z. *Roles of Nonequilibrium Conduction Electrons on the Magnetization Dynamics of Ferromagnets.* Phys. Rev. Lett. **93**(12) :127204 (2004)
- [172] Yamanouchi, M., *et al.* *Current-induced domain-wall switching in a ferromagnetic semiconductor structure.* Nature **428**(6982) :539–542 (2004)
- [173] Bohlens, S., Pfannkuche, D. *Width dependence of the nonadiabatic spin-transfer torque in narrow domain walls.* Phys. Rev. Lett. **105**(October) :1–4 (2010)
- [174] Khvalkovskiy, A. V., *et al.* *High Domain Wall Velocities due to Spin Currents Perpendicular to the Plane.* Phys. Rev. Lett. **102**(6) :067206 (2009)
- [175] Bode, M., *et al.* *Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry.* Nature **447**(7141) :190–193 (2007)
- [176] Ferriani, P., *et al.* *Atomic-scale Spin spiral with a unique rotational sense : Mn monolayer on W(001).* Phys. Rev. Lett. **101**(2) :1–4 (2008)
- [177] Heide, M., Bihlmayer, G., Blügel, S. *Dzyaloshinskii-Moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films : Fe/W(110).* Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **78**(14) :1–4 (2008)
- [178] Meckler, S., *et al.* *Real-Space Observation of a Right-Rotating Inhomogeneous Cycloidal Spin Spiral by Spin-Polarized Scanning Tunneling Microscopy in a Triple Axes Vector Magnet a b* **157201**(October) :1–4 (2009)
- [179] Heinze, S., *et al.* *Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions.* Nat. Phys. **7**(9) :713–718 (2011)
- [180] Rohart, S., Thiaville, A. *Skyrmion confinement in ultrathin film nanostructures in the presence of Dzyaloshinskii-Moriya interaction.* Phys. Rev. B **88**(18) :184422 (2013)
- [181] Fert, A., Cros, V., Sampaio, J. a. *Skyrmions on the track.* Nat. Nanotechnol. **8**(3) :152–6 (2013)

- [182] Je, S.-G., *et al.* *Asymmetric magnetic domain-wall motion by the Dzyaloshinskii-Moriya interaction.* Phys. Rev. B **88**(21) :214401 (2013)
- [183] Hrabec, A., *et al.* *Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films.* Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **90**(2) :1–5 (2014)
- [184] Emori, S., *et al.* *Spin Hall torque magnetometry of Dzyaloshinskii domain walls.* Phys. Rev. B **90**(18) :184427 (2014)
- [185] Franken, J. H., *et al.* *Tunable chiral spin texture in magnetic domain-walls.* Sci. Rep. **4** :5248 (2014)
- [186] Ryu, K.-S., *et al.* *Chiral spin torque at magnetic domain walls.* Nat. Nanotechnol. **8**(7) :527–533 (2013)
- [187] Cortés-Ortuño, D., Landeros, P. *Influence of the Dzyaloshinskii-Moriya interaction on the spin-wave spectra of thin films.* J. Phys. Condens. Matter **25**(15) :156001 (2013)
- [188] Di, K., *et al.* *Direct Observation of the Dzyaloshinskii-Moriya Interaction in a Pt/Co/Ni Film.* Phys. Rev. Lett **047201**(January) :1–5 (2015)
- [189] Nembach, H. T., *et al.* *Linear relation between Heisenberg exchange and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in metal films.* Nat. Phys. **11**(10) :825–829 (2015)
- [190] Donahue, M., Porter, D. *OOMMF* <http://math.nist.gov/oommf/>
- [191] Belmeguenai, M., *et al.* *Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized Pt/Co/AlO<sub>x</sub> ultrathin films measured by Brillouin light spectroscopy.* Phys. Rev. B **91**(18) :1–4 (2015)
- [192] Torrejon, J., *et al.* *Interface control of the magnetic chirality in CoFeB/MgO heterostructures with heavy-metal underlayers.* Nat. Commun. **5** :1–8 (2014)
- [193] Chen, G., *et al.* *Unlocking Bloch-type chirality in ultrathin magnets through uniaxial strain.* Nat. Commun. **6** :6598 (2015)
- [194] Nagao, M., *et al.* *Direct observation and dynamics of spontaneous skyrmion-like magnetic domains in a ferromagnet* (April) :2–5 (2013)
- [195] Nagaosa, N., Tokura, Y. *Topological properties and dynamics of.* Nat. Publ. Gr. **8**(12) :899–911 (2013)
- [196] Pelliccione, M., *et al.* *Scanned probe imaging of nanoscale magnetism at cryogenic temperatures with a single-spin quantum sensor.* arXiv pp. 3–5 (2014)
- [197] Luan, L. *Magnetic force microscopy studies of unconventional superconductors.* Thèse de Doctorat (2011)
- [198] McClure, J. W. *Diamagnetism of Graphite.* Phys. Rev. **104**(3) :666–671 (1956)
- [199] Lemaitre, A., *et al.* *Strain control of the magnetic anisotropy in (Ga,Mn) (As,P) ferromagnetic semiconductor layers.* Appl. Phys. Lett. **93**(2) (2008)
- [200] Gorchon, J., *et al.* *Stochastic current-induced magnetization switching in a single semiconducting ferromagnetic layer.* Phys. Rev. Lett. **112**(2) :1–5 (2014)

## Résumé

Les parois de domaines dans les films ferromagnétiques ultra-minces sont au cœur de nombreux systèmes émergents pour le traitement et le stockage de l'information. L'observation de ces textures d'aimantation reste cependant délicate, notamment en raison des très faibles densités de moments magnétiques mises en jeu dans ces matériaux magnétiques, épais de quelques couches atomiques seulement. Dans cette thèse, nous proposons l'utilisation d'une nouvelle technique d'imagerie magnétique pour étudier les parois de domaines, la microscopie à balayage de centre NV. Cette technique, qui repose sur la mesure du déplacement Zeeman de l'énergie du spin électronique unique d'un centre coloré NV du diamant, combine des caractéristiques sans équivalent, permettant de mesurer le champ magnétique de manière quantitative dans un volume de détection de taille atomique.

Le début du manuscrit vise à introduire les parois de domaines magnétiques dans les films ultra-minces, en regard de leurs potentielles applications. Nous dressons ensuite un état de l'art des techniques permettant d'observer ces objets, en soulignant leurs avantages et leurs inconvénients. L'expérience de microscopie magnétique à balayage de centre NV est alors décrite, et nous montrons que ses caractéristiques sont idéales pour l'imagerie des parois de domaines dans les couches ferromagnétiques ultra-minces. Dans la suite du manuscrit nous développons trois exemples en lien avec ces objets, pour lesquels la microscopie à centre NV permet d'apporter des informations nouvelles. Nous commençons par étudier l'interaction des parois avec les défauts du matériau, en observant la dynamique de sauts de Barkhausen thermiquement activés. Nous étudions ensuite le matériau plus en détail, en introduisant une mesure quantitative de la densité de moments magnétiques résolue à des échelles submicroniques. Enfin, nous présentons une méthode permettant de déterminer la structure interne des parois de domaines par la mesure de leur champ magnétique de fuite. Cette méthode est appliquée à diverses couches ferromagnétiques ultra-minces, afin d'étudier l'influence de l'interaction interfaciale de Dzyaloshinskii-Moriya sur la structure de la paroi.

L'ensemble des résultats obtenus grâce à la microscopie à balayage de centre NV dans les couches ultra-minces ferromagnétiques démontrent les potentialités de la technique, et ouvrent de nombreuses perspectives quant à l'utilisation de cette nouvelle technique pour les études en nanomagnétisme.

## Abstract

Domain walls in ultra-thin ferromagnetic films are the cornerstones of many emerging devices, for both information processing and data storage. However, observing such magnetization patterns remains challenging, notably because the number of magnetic moments is particularly low in these atomic-thick layer. In this thesis, we propose to use a new imaging technique for studying domain walls, namely the NV centre scanning microscopy. This technique relies on the measurement of the energy shifts caused by the Zeeman effect on the electronic spin of a single NV colour centre in diamond, and combines unequalled characteristics for measuring the magnetic field in a quantitative fashion and with an atomic detection volume.

The beginning of the thesis introduces domain walls in ultra-thin ferromagnetic films, in regard to their potential applications. In the following, we depict different techniques at the state of the art for observing these objects, stressing on their advantages and on their drawbacks. The experimental setup of scanning NV microscopy is then described, and we show that its characteristics are ideal for imaging domain walls in ultra-thin ferromagnetic films. The end of the thesis is focused on three problems linked with these objects, for which NV microscopy can bring new insights. Firstly, we begin with studying the interaction between a domain wall and defects by observing the dynamics of thermally activated Barkhausen jumps. Secondly, we study the material more in details, by introducing a new way to measure the magnetic moment density at a submicron scale. Lastly, we describe a method allowing for the determination of the inner structure of a domain wall, through a stray magnetic field measurement. This method is applied to different ultra-thin ferromagnetic layers, in order to study the influence of the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction on the domain wall structure.

All the results obtained by scanning NV microscopy demonstrate the potentiality of the technique, and open many new perspectives for using this new technique to solve nanomagnetism issues.

