



HAL
open science

De la microscopie de Lorentz in situ à la l'interférométrie électronique in operando

Aurélien Masseboeuf

► **To cite this version:**

Aurélien Masseboeuf. De la microscopie de Lorentz in situ à la l'interférométrie électronique in operando. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Toulouse III Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier), 2019. tel-02060034

HAL Id: tel-02060034

<https://theses.hal.science/tel-02060034v1>

Submitted on 3 Jul 2019

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.







De la microscopie de Lorentz *in situ* à l'interférométrie électronique *in operando*

Travaux de Recherche effectués à :
Toulouse (CEMES - CNRS) et
Grenoble (INAC - CEA & Institut Néel - CNRS)

pour obtenir l'Habilitation à Diriger des Recherches de
l'Université Paul Sabatier - Toulouse III
spécialité **Physique Appliquée**

présenté par
Aurélien Masseboeuf

Soutenue le Mardi 14 Mai 2019
devant le jury composé de :

Stefania Pizzini	Directrice de recherche <i>Institut Néel - Grenoble</i>		Rapporteuse
André Thiaville	Directeur de recherche <i>LPS - Paris</i>		Rapporteur
Myriam Pannetier-Lecoer	Chercheuse <i>LNO - Paris</i>		Rapporteuse
Gilles Gaudin	Directeur de recherche <i>Spintec - Grenoble</i>		Président du Jury
Hanako Okuno	Chercheuse <i>Lemma - Grenoble</i>		Examinatrice
Daniel Lacour	Chargé de recherche <i>Institut Jean Lamour - Nancy</i>		Examineur
Bénédicte Warot	Chargée de Recherche <i>CEMES - Toulouse</i>		Examinatrice
Marc Respaud	Professeur <i>INSA-Toulouse</i>		Examineur

« — *Personne ne sait ce qu'il se passe aujourd'hui
parce que personne ne veut qu'il se passe quelque chose.*

*En réalité on ne sait jamais ce qui se passe,
on sait simplement ce qu'on veut qu'il se passe
et c'est comme ça que les choses arrivent.*

En 17, Lénine et ses camarades ne disaient pas :

*"Nous allons faire la révolution
parce que nous voulons la révolution".*

Ils disaient,

*"Toutes les conditions de la révolution sont réunies,
la révolution est inéluctable",
pour faire une révolution
qui n'aurait jamais eu lieu s'ils ne l'avaient pas faite,
et qu'ils n'auraient pas faite
s'ils n'avaient pas pensé qu'elle était inéluctable
uniquement parce qu'ils la voulaient.*

...

*Chaque fois que quelque chose a bougé dans ce monde
ça a toujours été pour le pire.*

Voilà pourquoi personne ne bouge.

Personne n'ose provoquer l'avenir.

Faudrait être fou pour provoquer l'avenir.

Faudrait être fou pour risquer de provoquer

un nouveau 19,

un nouveau 14,

un nouveau 37...

— *Mais alors, il ne se passera jamais plus rien... ?*

— *Si...*

...

Parce qu'il y aura toujours des fous,

Et des cons pour les suivre,

Et des sages pour ne rien faire...

»

JEAN PIERRE LÉAU & LOU CASTEL
dans LA NAISSANCE DE L'AMOUR
dialogues de MARC CHOLODENKO
mis en musique par les TROUBLEMAKERS

Introduction

Voici donc venu le temps d'une ré-évaluation de mon activité de recherche. Je vous souhaite, Stefania, Miryam, André, une lecture agréable, en espérant qu'il n'y a pas trop d'approximations ou d'erreurs et je vous remercie de prendre le temps de lire ceci et d'en proposer l'évaluation. Je voudrais introduire ce manuscrit par un grand merci à Bénédicte qui m'a encouragé, aidé, poussé, relancé et corrigé, bref à qui je dois en grande partie les pages suivantes.

Mon parcours scientifique depuis la soutenance de ma thèse peut s'articuler autour de certaines dates que je liste ci-dessous et qui pourraient aider à contextualiser le contenu de ce manuscrit :

- ⇒ 2008 Soutenance de Thèse, mention Physique Appliquée (UJF, Grenoble)
- ⇒ 2009 Post-Doc au CEMES (CNRS, Toulouse)
- ⇒ 2010 Post-Doc à l'Institut Néel/INAC (CNRS/CEA, Grenoble)
- ⇒ 2011 Recrutement au CNRS, section 05 (CEMES, Toulouse)
- ⇒ 2016 Soutenance de Thèse de R. Wang (UPS, Toulouse/UNIZAR, Zaragosse)
- ⇒ 2018 Demande de mutation vers Spintec (CNRS-CEA, Grenoble)
- ⇒ 2019 Demande d'habilitation à Diriger des Recherches

Ma thèse était consacrée à l'étude du micromagnétisme via la microscopie électronique. J'ai depuis découvert les propriétés physiques et le vaste monde des nano-carbones, mais la microscopie électronique reste l'outil majeur de mes développements. Je voudrais introduire mes travaux et le cœur de mes activités de recherche sous la forme d'une figure décrivant les différentes échelles spatiales auxquelles je me confronte. Ce manuscrit voyagera ainsi à travers celles-ci.

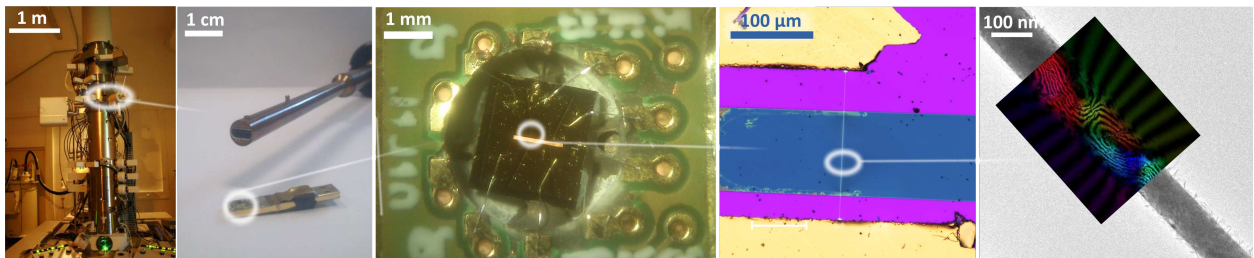


FIGURE 1 – Échelles spatiales de la microscopie électronique *in situ*

m : le microscope électronique et plus largement l'optique électronique (cf Fig. 1-m) sont au cœur de mon activité. Je présenterai notamment des développements de nouvelles sources et de méthodologies interférométriques.

cm : La connexion macroscopique est un sujet très vaste, centré ici sur la microscopie électronique (mais pas uniquement). Les porte-objets (cf Fig. 1-cm), et d'autres développements instrumentaux à cette échelle seront abordés.

mm : L'électronique nécessaire doit être adaptée aux contraintes expérimentales mais peut également, à petite échelle (cf. Fig. 1-mm), servir de support et de design expérimental.

μm : L'interconnexion du matériau d'étude avec le monde macroscopique (cf. Fig. 1- μm) est réalisé via la nanofabrication notamment. Plusieurs développements dans ce sens ont été réalisés.

nm : Je présenterai 2 types de matériaux (Fig. 1-nm), les nano-carbones et les matériaux magnétiques, qui imposent leurs contraintes au reste de l'expérience

Table des matières

Introduction Générale	1
Table des Matières	2
I Echelle Nanométrique et Nano-Characterisation	4
I.1 Décrire et adresser les Nano-objets	5
a De l'échelle Macroscopique...	5
b ... à l'échelle nanométrique	10
I.2 Les méta-Carbones	14
a Graphenes et Matériaux 2D	14
b Nanotubes de carbone	15
I.3 Nano et micromagnétisme	18
a Dimensionnalité du micromagnétisme	19
b Matériaux de Pied en Cap	21
c Mouvement de parois	23
d In operando et nouvelles sensibilités	26
Digression	28
II Imagerie Magnétique & Dynamique	32
II.1 Dispositifs MRAM	33
II.2 Micro et Nanomagnetisme	34
a Structures 1D	34
b Skyrmions	34
II.3 Spin Orbital Torque et Microscopie Électronique	35
II.4 Besoins en développement instrumentaux	36
II.5 Conclusion	38
Conclusion	39
III Bibliographie classée	40
Articles Publiés dans des revues à Comité de Lecture	41
Thèses, Post-Doc et Stages encadrés	43
Projet (co-)coordonnés	45
Rapports d'expertise	46
Autres références	47
Annexes	54
Curriculum Vitae	54
Publications Sélectionnées	56
<u>Physical Review Letters</u> (2010) 104 , 127204	56
<u>Carbon</u> (2012) 50 , 2037	60
<u>Micron</u> (2014) 63 , 2	68
<u>NanoResearch</u> (2014) 8 , 1241	75
<u>Ultramicroscopy</u> (2016) 164 , 24	84



Chapitre Premier

Nanomatériaux dans les STICS :

Échelle nano & nano-caractérisation

Sommaire

I.1	Décrire et adresser les Nano-objets	5
a	De l'échelle Macroscopique...	5
b	... à l'échelle nanométrique	10
I.2	Les méta-Carbones	14
a	Graphenes et Matériaux 2D	14
b	Nanotubes de carbone	15
I.3	Nano et micromagnétisme	18
a	Dimensionnalité du micromagnétisme	19
b	Matériaux de Pied en Cap	21
c	Mouvement de parois	23
d	In operando et nouvelles sensibilités	26

La Science des Technologies de l'Information et des Communications (ICT - Information & Communication Technologies) est une part prépondérante de la recherche appliquée et à ce titre très intéressante pour ce qui est du financement sur projet (plus de 20 % du budget du dernier appel d'offre de l'ANR : 11% de l'enveloppe dédiée auxquels s'ajoutent les sujets transverses (résultats de l'AAP2017)). A ce terme, qui regroupe toute forme de développement ayant pour finalité l'intégration dans un système communicant et allant de la consommation d'un serveur internet à l'oscillateur d'antenne d'un téléphone portable, s'est très vite greffé le préfixe symbole de la miniaturisation, de l'intégration plus dense et de la faible consommation : le *nano*. C'est dans ce vaste champ multi-disciplinaire que s'est déroulée mon activité de recherche, notamment par l'accès à l'échelle nanométrique qu'offre la microscopie électronique en transmission (MET).

Les images utilisées sur les pages de présentation des chapitres sont issues du travail de Fabian Oefner.

L'information de haute résolution spatiale offerte par la MET a de tout temps permis de relier une propriété physique à une particularité (ou une régularité) structurale ou chimique. Pour utiliser le microscope comme un outil de mesure physique à part entière, il faut donc adresser la mesure physique et s'affranchir de la caractérisation MET traditionnelle qui devient une autre mesure indépendante. Il est nécessaire d'effectuer des mesures complémentaires pour s'assurer d'une rigueur suffisante et surtout assurer la consistance de la méthode. L'un des meilleurs moyen d'obtenir *facilement* ce complément de mesure est la méthode *in situ* : la mesure est reproduite immédiatement, dans des conditions quasi-identiques, après une modification de l'état physique de l'échantillon. Un exemple parlant est l'aimantation d'une structure magnétique pour s'assurer de sa modification avec le champs et donc de sa consistance (pas de contraste parasite). L'utilisation du microscope de façon légèrement en dehors de son fonctionnement habituel nécessite donc ces précautions pour aboutir à une mesure physique consistante. Mais cette précaution ouvre aussi une nouvelle dimension de mesure avec l'*in situ*. Les méthodes photoniques basées sur le rayonnement synchrotron développent des approches identiques tirant partie des différents éléments d'optique électronique (e.g. dichroïsme réalisé avec les différentes nappes du faisceau X produites dans les éléments de courbure) ou du séquençage des paquets d'électrons (e.g. expériences pompe-sonde).

Je vais m'attacher ici à présenter à cette aune mes travaux de recherche : une première partie traitera des propriétés physiques des nano-objets, et comment ces propriétés physiques nous sont accessibles à l'échelle macroscopique puis comment il est possible de relier ces mesures à l'échelle nano via la microscopie *in situ*. Je détaillerai ensuite 2 applications principales de ces travaux via les nano-carbones et le micromagnétisme.

I.1 Décrire et adresser les Nano-objets

Pour atteindre l'échelle nanométrique, et a fortiori la mesure de propriétés physiques à cette échelle, il faut des outils et même nano-, un bon outil se doit d'avoir un manche. Pour ne pas se faire taxer de paresse tout d'abord, ensuite pour être à même d'appréhender et de manipuler cette échelle, un microscope, fusse-t-il électronique, ne suffit pas. Je veux aborder quelques aspects de ce manche indispensable que sont la nano-fabrication et la nano-manipulation qu'il m'a fallu parfois adapter pour que le microscope électronique soit un outil de caractérisation physique à l'échelle nanométrique. Je présenterai ensuite quelques unes des techniques et méthodes que nous avons mises en œuvre pour sonder les propriétés physiques des nano-objets via l'interférométrie et l'holographie électronique.

a De l'échelle Macroscopique...

J'ai choisi de démarrer la description des méthodes par celle qui a sûrement profité au plus grand nombre d'études^{1,2,4,5,7,8}, et qui s'accommode surtout parfaitement de la comparaison au monde macroscopique : l'assemblage par soudure. Cette comparaison cesse tout de même au vu de la taille sub-micronique de ces objets. La simple considération que l'interaction directrice à cette échelle est déjà électro-magnétique et non plus gravitationnelle donne une idée des forces en présence. Il m'est notamment arrivé de perdre plus de temps que l'expérience en elle même pour décrocher un objet attaché de manière involontaire. Nous aborderons ensuite la problématique des échantillons pour le TEM et leurs dimensions nanométriques qu'il faut préparer pour finir sur un exemple de mesure de propriété physique macroscopique : l'émission de champ dans un canon à électrons.

i Manipulation Sub-Micronique

Dans l'optique d'études multiples sur l'objet unique, il est nécessaire de pouvoir manipuler les objets à une échelle quasi-nanométrique. Le cas le plus parlant est le montage des nano-cônes de carbone (dont il sera question dans la prochaine section) sur des pointes pour l'étude de leurs propriétés

émissives . J'ai utilisé le FIB (Focused Ion Beam) pour cette installation de précision et standardisé la méthode pour l'effectuer sur divers supports. L'avantage du FIB est de pouvoir à la fois usiner, souder et manipuler tout en observant l'objet à son échelle. Un nano-cônes de carbone est défini par une base en fibre de carbone d'environ 1 μm de diamètre supportant un nanotube multi-parois avec une section progressivement décroissante jusqu'à ce nanotube (de l'ordre de 5 nm de diamètre). Le montage est décrit dans la Fig. I.1 et il faut désormais moins d'une heure pour l'effectuer.

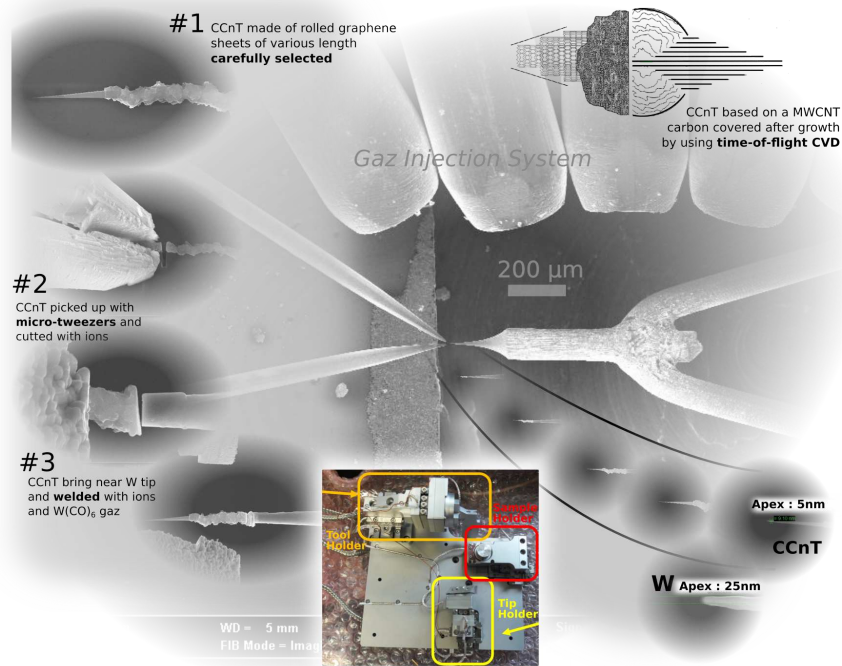


FIGURE I.1 – Montage d'un nano-cônes sur une pointe de Tungstène avec l'utilisation conjointe d'une micro-pince (à gauche) et de buses d'injection de gaz précurseur (GIS - en haut) pour le dépôt de matière. Les inserts de gauche détaillent le processus de montage par préhension, découpe de la fibre de carbone et fixation sur la pointe. Les zooms successifs de droite permettent de comparer l'apex final de la pointe à la pointe W initiale. L'insert en bas montre la nouvelle plateforme à 11 degrés de libertés en cours d'installation.

Le design d'une nouvelle plateforme (cf. Fig.I.1(B)) devait permettre de repousser encore un peu plus loin les limites en temps et en reproductibilité du montage^{Mon14}. Celle-ci, fabriquée par la société Smaract est encore en phase de développement sur le FIB (des soucis de vibrations et de potentiels non maîtrisés nous ont empêché de finaliser son utilisation) mais d'ores et déjà intégralement instrumentée^{EC16,LH17}. Son design a été motivé par 2 améliorations nécessaires :

Le positionnement cartésien, reproductible et enregistrable des divers éléments. Cette plate-forme présente 11 degrés de libertés intégralement adressables de façon indépendante.

Assurer un maintien renforcé des nano-objets assemblés par la possibilité d'effectuer une soudure sur l'ensemble de l'embase avec une rotation libre de l'objet.

De plus cette plate-forme est entièrement modulaire pour des adaptations ultérieures (mesures de résistivité in-situ par exemple). Nos dernières analyses ont révélé que l'utilisation des ions durant le

processus, même en protégeant les objets (pas de scan sur celui-ci, ou protection de l'objet derrière les mors de la pince) pouvait dans certaines conditions (type de substrat utilisé pour la dispersion des objets notamment) engendrer une amorphisation de celui-ci. Nous étudions donc actuellement diverses méthodes sans l'utilisation des ions pour optimiser le procédé.

Dans un laboratoire de microscopie électronique, le FIB est avant tout utilisé pour la fabrication des échantillons pour la MET. Nous allons donc aborder la problématique de la préparation des échantillons et ce qu'il a fallu développer pour nos études présentées dans les prochaines sections.

ii Préparation des échantillons

La simple observation des nano-objets, qu'ils soient constitués d'atomes de carbone ou qu'ils proposent une aimantation spontanée, pouvait se résumer il y a 10 ans encore à la seule utilisation, certes avancée, de la microscopie électronique dans ses divers modes et donc diverses sensibilités. La préparation des échantillons pour la MET était alors une part prépondérante de l'observation. Nous avons notamment durant 4 ans avec les principaux laboratoires de microscopie européens tenté de définir les meilleurs protocoles de préparation des échantillons pour la microscopie^{SE16}. Mais pour aller plus loin dans l'exploration des mécanismes et surtout leur impact à l'échelle macroscopique, il est nécessaire d'observer ces objets avec un stimuli externe pour apporter une quatrième dimension aux observables enregistrées.

La plupart des besoins de stimuli sont couverts, et ce depuis longtemps, dans de nombreuses autres techniques (où l'image n'est souvent pas nécessairement porteuse du résultat). Il est donc urgent de pouvoir concilier les techniques de nanofabrication utilisées de façon standard dans de nombreux autres domaines (connexions, piste de chauffage, génération de champs électro-magnétiques) avec les contraintes de la microscopie électronique (espace réduit, ultra-vide, transparence aux électrons). L'objectif principal de mes développements réside dans l'intégration de plusieurs autres techniques de caractérisation sur le même objet, avec les mêmes contraintes, tout en préservant les caractéristiques requises pour la MET.

Notons ici que j'ai effectué une revue exhaustive du sujet général de la microscopie in situ, mais qui nécessiterait une mise à jour au vu des développements récents. J'y détaille en profondeur l'état de l'art, et notamment les outils de préparation d'échantillon, ainsi que le futur de cette thématique¹².

Les membranes ultrafines, transparentes aux électrons, répondent à l'une des principales contraintes de la microscopie électronique en transmission tout en assurant la continuité des outils de nanofabrication. On prend en général pour épaisseur caractéristique le libre parcours moyen des électrons dans la matière, de l'ordre de 100 nm. Un des supports les plus utilisés en microscopie est la membrane de nitrure de silicium suspendue. Elle permet une observation facile de nano-objets dispersés ou déposés grâce à sa faible épaisseur (jusqu'à 10 nm) mais elle présente aussi une surface parfaitement plane et transparente localement, idéale pour des étapes de lithographie (avant ou après la dispersion). De nombreuses solutions commerciales existent mais outre leur prix élevé il n'existe que peu de versatilité dans leur design (à moins d'un budget conséquent). Il est donc important de pouvoir développer une filière de membranes à façon. J'ai mis en œuvre cette filière grâce aux conseils avisés de Bruno Fernandez (Institut Néel) et du travail de différents stagiaires^{Mau13,Moh15,Gar16,Bra15,Vig18,Hoa18,Rav18} (la fabrication de ces membranes fait intervenir toutes les étapes élémentaires de la nanofabrication : lithographie, gravure sèche, humide et dépôt par lift-off; celle-ci sont donc un très bon outil de formation pour les étudiants). En parallèle de cette mise en place, j'ai aussi exploré de nouveaux types de membranes comme la silice via la gravure sèche profonde ou la gravure humide au TmaH.

La principale problématique des membranes dérivées du Silicium est leur très faible conductivité thermique qui engendre un effet de chauffe local important dès qu'un courant même faible est requis.

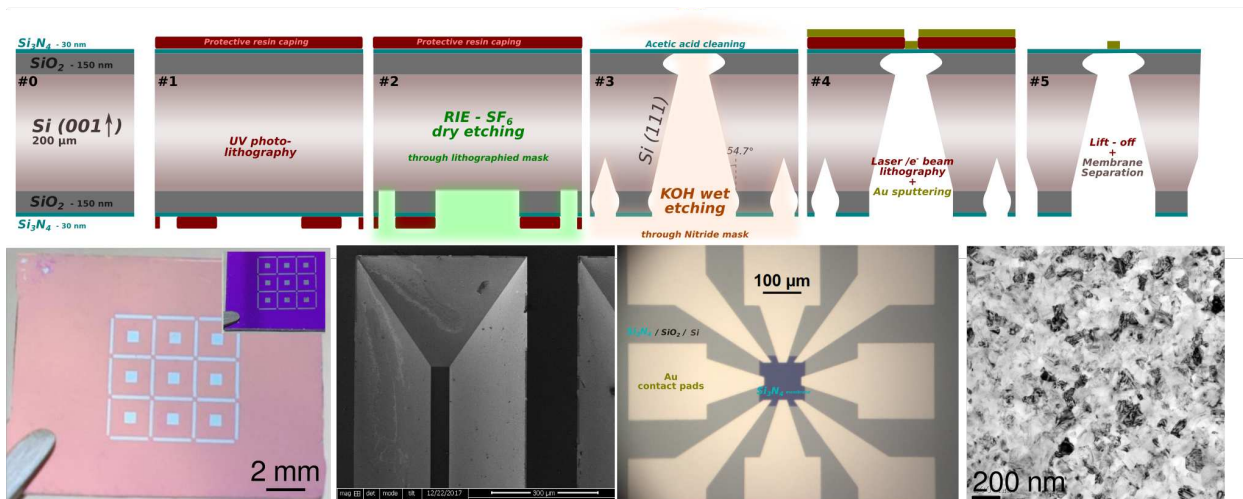


FIGURE I.2 – (Haut) Fabrication des membranes de nitrure en 5 étapes. (Bas G) Membranes de nitrure avant gravure humide, après ouverture du dessin des membranes dans le nitrure de 35 nm (50 nm pour l'échantillon en insert). Flans d'attaque en gravure humide suivant les direction (110) du silicium vue au MEB (la membrane est au fond). Image optique d'un dispositif prêt à l'emploi proposant 8 reprises de contact sur une membrane de 100 μm de côté et de 30 nm d'épaisseur. (D) Image MET d'une membrane de diamant. La taille des cristaux est de l'ordre de 50 nm.

En partenariat avec l'entreprise Diamond Materials*, j'ai caractérisé des membranes en diamant (à l'opposé, l'un des meilleurs matériaux en terme de conductivité thermique). La structure polycristalline de celles-ci est un handicap mais il semble après discussion avec l'entreprise que la taille des grains pourrait être diminuée ce qui en ferait un outil très intéressant pour la microscopie à grand champ de vue (où une taille de grain de quelques nm devient négligeable vis-à-vis de notre résolution). La maîtrise de ces process, désormais standardisés, permet de proposer à tous mes collaborateurs des échantillons prêt à subir un dépôt et/ou des étapes de nanofabrication tout en étant prêt à être observés au MET sans autre étape de préparation.

J'ai beaucoup travaillé avec un type d'échantillon qui ne rentre pas dans les descriptions précédentes : les pointes à émission de champ. Ces pointes nécessitent une préparation qui leur est propre et surtout une caractérisation dédiée que je détaille dans la prochaine section.

iii Émission de champ

Il est un processus physique auquel je me suis beaucoup intéressé ces dernière années : l'émission électronique par effet de champ *froide*. Le terme *froid* vient de la démocratisation de l'émission d'électrons à forte brillance par effet de champ, l'équivalent du laser pour les électrons. Celle-ci a tout d'abord été réalisée dans les canons MET par un processus d'émission Schottky. L'émission Schottky est une combinaison entre l'émission thermoïonique assistée par un champ électrique et l'émission de champ pure assistée thermiquement (une émission de champ *chaude*). C'est en voulant améliorer les capacités interférométriques des canons à électrons et développer de nouvelles sources que nous avons⁸ acquis la maîtrise des outils nécessaires à une telle caractérisation : nano-manipulation, ultra-vide, électronique et haute-tension.

Le banc pour l'émission de champ que nous avons dessiné pour caractériser les propriétés émissives des nano-structures de carbone comprend : une enceinte sous Ultra-Vide ($< 10^{-8} \text{ Pa}$) équipée d'un canon à électrons (issu d'un ancien microscope) à émission de champ froide ; la détection des électrons est assurée par une coupe de Faraday ainsi que par une galette micro-canaux (Micro-Channel

*. www.diamond-materials.com

Plate - MCP) suivie d'un écran phosphorescent pour observer la figure d'émission. Il a notamment été financé par les projets LASCAR [Cha12,Cha17](#) et fait partie d'un ensemble de 2 bancs dont les sources sont interchangeables : le principe était d'effectuer la caractérisation complète en champ statique dans le banc installé au CEMES et ensuite la caractérisation dynamique (avec champ porté par des impulsions laser) à l'IRSAMC.

Les deux principales caractéristiques du banc côté CEMES sont : (i) l'utilisation d'un canon à électron réel de MET pour découpler les électrons émis des électrons réellement présent dans la sonde électronique ; (ii) la création d'un porte-objet pour pouvoir effectuer une imagerie en microscopie par projection. Ces 2 caractéristiques devraient nous permettre de remonter plus aisément à la brillance réelle de la source par détermination de ses capacités interférométriques. Le banc côté IRSAMC est lui équipé d'un spectromètre en énergie qui permet de remonter aux informations essentielles sur la nature du processus émissif mais aussi de coupler ces informations avec les précédentes afin de caractériser précisément les dimensions de la source virtuelle ainsi créée.

Ce banc a été l'un des outils d'étude de la thèse de R. Wang [Wan16](#) et dessiné pour celle-ci. Néanmoins nous n'avons pu apprécier toutes ses capacités par manque de temps tout d'abord mais surtout à cause de nombreux problèmes souvent simples mais non identifiés à la conception. Un exemple criant est la longueur du trajet des électrons que nous avons choisie pour une projection optimum qui s'est heurtée à l'intégration de la déflexion due au champ magnétique terrestre sur nos électrons à faible énergie. Sur cette distance, elle est d'un ordre de grandeur équivalent, mais tout juste supérieure, à la taille de la MCP installée. Si nous avons pu mener certaines études à terme, il semble que nos ambitions aient été un peu trop gourmandes vis à vis de ce qu'un tel outil requiert de temps et d'investissement.

"Le diable et les détails, c'est une histoire de cache-cache". Je me permets de paraphraser Nietzsche pour conclure cette partie instrumentale car de nombreux projets ont tout de même vu le jour (ou sont en passe de le voir) à travers divers développements instrumentaux menés notamment à l'aide du travail précieux d'étudiants sur ces divers sujets :

La fabrication de pointes nanométriques métalliques (cf. Fig.I.3(a)) est réalisée via un processus électrochimique (identique à celui utilisé pour les pointes de microscopie tunnel) qui requiert une attention particulière pour optimiser les pointes nous servant d'étalon pour nos mesures sur les nano-carbones. Un banc de fabrication a été réalisé pour remplacer la manip de pailleuse mise en place à l'origine. Notons également que ces pointes sont aussi très importantes pour nos expériences en holographie in-situ. Ce banc est notamment équipé d'un système automatisé de remontée de la pointe une fois celle-ci formée et d'une alimentation modulaire pour les différents métaux (signaux continus avec détection de seuil pour le tungstène ou signal créneau pour l'or, remontée progressive durant l'attaque pour l'argent). Ce banc a notamment été rendu possible par l'investissement de Christian Pertel du service électronique du CEMES que je tiens à remercier ici [Vig12,Bed14,Vil17,Pes18](#).

Le nettoyage par flash (cf. Fig.I.3(b)) est un processus simple de chauffage d'une pointe pour désorber les atomes s'y attachant lors du dégazage des éléments du canon (et notamment le dégazage dû aux électrons émis frappant l'anode extractrice) mais également pour enlever les résidus dus à l'attaque électrochimique. Si les pointes sont nettoyées dans notre banc de mesure, elle ne peuvent subir aisément (banc sous UHV) un tel process pour analyser la qualité du nettoyage après différentes puissance de chauffage. Nous avons donc mis en place un petit banc de flash pour effectuer le nettoyage directement après la fabrication : un système d'injection de courant de plusieurs ampères sur une durée modulable (< 1 s), un système de détection du courant thermoionique émis (de l'ordre du mA), une fenêtre de visualisation pour une double détection (courant et lumière produite), le tout sous un vide primaire [Wan16](#).

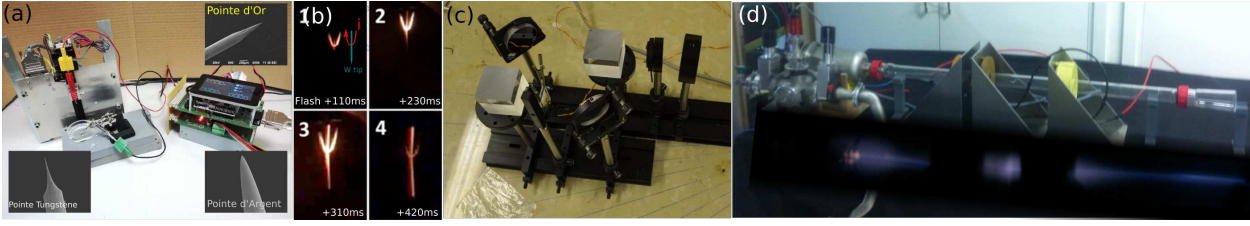


FIGURE I.3 – Petits bancs d’élaboration, caractérisation ou démonstration développés. (a) Banc de fabrication de points fins dans divers métaux, entièrement instrumenté. (b) Images extraites du banc de flash permettant de suivre la propagation de la chaleur durant un flash. (c) Banc optique de démonstration en configuration Max-Sender pour l’étude d’une cellule à cristaux liquide. (d) Banc d’optique électronique et cliché du trajet électronique (ionisation de l’hydrogène) superposé.

Un banc d’interférométrie optique (cf. Fig.I.3(c)) à vocation pédagogique a également été construit et est en cours d’amélioration. L’idée de ce banc est de pouvoir réaliser une comparaison visuelle du phénomène d’interférence entre un interféromètre optique et ce qui est réalisé dans un MET. Ce banc présentera ainsi un aspect modulaire entre un interféromètre Mach-Zehnder et une reproduction du chemin optique réalisé dans un MET par l’utilisation d’un double miroir de Fresnel à angle ajustable jouant le rôle du biprisme et qu’il est possible d’instrumenter avec un moteur pour retrouver la versatilité d’un biprisme de Mollenstedt en microscopie électronique. Les objets analysés seront une cavité sous vide ou pression de divers gaz ainsi qu’une cellule de cristal liquide développée par Gonzague Agez qui participe à la création de ce banc ^{CP13}.

Un banc d’optique électronique (cf. Fig.I.3(d)) est également en cours de réalisation. Celui-ci devrait permettre de reconstituer un microscope électronique avec une visualisation du chemin des électrons au travers des lentilles electro-magnétiques. Ce banc est inspiré des ampoules type Tube de Crookes qui permettent de calculer le rapport e/m de l’électron. Nous voulions ici un outil pour analyser la trajectoire hélicoïdale des électrons à l’intérieur du champ magnétique généré non pas par des bobines d’Helmoltz mais par une combinaison de lentille extraites d’un microscope ^{LH13,NL14}.

Après cette introduction aux éléments macroscopiques mais nécessaires et indispensables à l’appréhension de l’outil d’étude qui fait le liant de ce manuscrit, nous allons maintenant entrer dans le monde nanométrique avec la microscopie électronique en transmission.

b ... à l’échelle nanométrique

i Microscopie et Interférométrie

L’holographie électronique est désormais une technique de caractérisation connue qu’il n’est plus nécessaire de présenter avant de pouvoir aborder les mesures physiques qui en découlent. La principale relation qui nous intéresse est l’équation établie par Aharonov et Bohm ⁸⁵ qui relie le déphasage d’une onde à la traversée d’un champ électromagnétique :

$$\Delta\phi = C_E \int_{\infty} Vdz - \frac{\pi}{\Phi_0} \int_{\infty} A_z dz$$

où

$\Delta\phi$ représente le déphasage de l’onde électronique

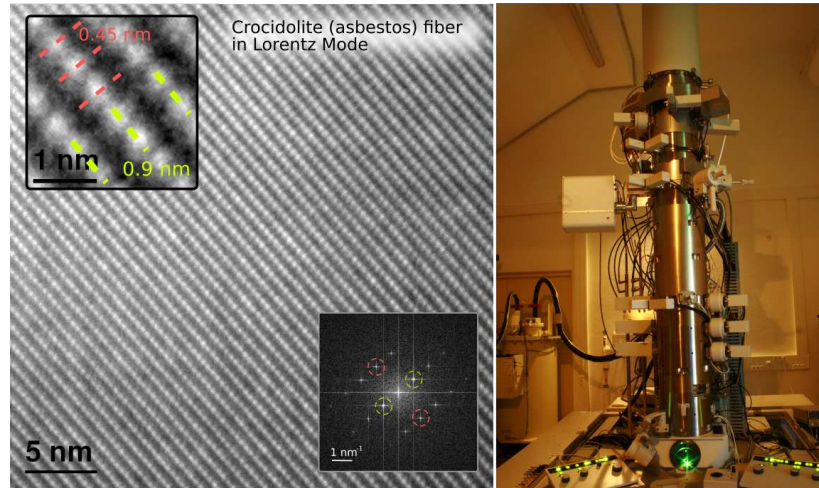
C_E est une constante liée à la longueur d’onde

Vdz est le potentiel électrostatique traversé comprenant à la fois le potentiel interne dû aux nuages électroniques de la matière et le potentiel d’un éventuel champs électrique

Φ_0 est le quantum de flux magnétique

$A_z dz$ est la composante suivant le trajet des électrons du potentiel vecteur de l'induction magnétique. De cette équation découle la possibilité avec l'holographie électronique^{109,164} de sonder diverses propriétés comme les potentiels en présence dans une jonction¹⁶⁵, la répartition de charges électriques¹¹¹ ou la distribution de la densité de flux magnétique traversée par l'onde électronique¹⁴.

FIGURE I.4 – (G) Cliché haute résolution obtenu en mode Lorentz : champ magnétique appliqué sur l'échantillon $< 60 \mu\text{T}$. (D) Photographie du microscope pour son premier jour d'émission d'électrons, avant l'installation des panneaux protecteurs. J'ai réalisé une vidéo en *time lapse* résumant l'installation de la machine disponible sur internet



Le CEMES s'est doté fin 2012 d'un nouveau microscope dédié à l'holographie et aux expériences *in situ* (I²TEM - Interferometric and In situ Transmission Electron Microscope). Celui-ci est donc équipé d'un canon à électron à émission de champ froide maximisant la cohérence et donc les capacités interférométriques ; de 4 biprismes répartis le long de la colonne pour pouvoir réaliser une multitude de configurations optiques pour l'holographie ; d'un système de double goniomètres pour d'une part accroître la résolution du microscope pour les grands champs de vue et d'autre part pour pouvoir disposer d'un échantillon dans un environnement totalement libre de champ magnétique ; d'un correcteur d'aberrations de dernière génération (B-COR) capable d'effectuer les corrections d'aberration *off-axis* et donc d'assurer une correction sur les grands champs de vue.

ii *Imagerie des champs électromagnétiques in situ*

L'*imagerie in situ* est donc la possibilité d'exercer un stimuli sur l'objet pendant son observation. Le CEMES s'est doté de très nombreux porte-objets pour l'application de ceux-ci. Il est ainsi possible d'effectuer des expériences avec une pointe STM mobile pour établir un contact, appliquer une contrainte ou un champ électrique local. Des études en température, en injectant un courant ou en mesurant n'importe quelle autre grandeur électrique sont également disponibles. L'utilisation de dispositifs MEMS (MicroElectroMechanical System) et bien sûr l'application de champs magnétiques via l'excitation d'une bobine entourant l'objet (lentille objectif pour un champ perpendiculaire, ou micro-bobinages autour de l'objet pour une application planaire) permettent d'étoffer encore plus la gamme de l'*in situ*. L'utilisation d'une pointe mobile et la possibilité d'appliquer un champ électrique de l'ordre de 100 V entre la pointe et un échantillon nous a permis d'observer la distribution du champ électrique autour de pointes CCnT durant l'émission⁵ mais également de compter les charges qui s'y trouvent grâce aux développements de traitement de Christophe Gatel. L'utilisation du soudage par fil nous a également permis de mettre en œuvre le fonctionnement d'une tête de lecture de disque dur à l'intérieur même du microscope⁶. La microscopie *in situ* a donc bénéficié des diverses préparations d'échantillon, de nano-manipulation et de nanofabrication décrites précédemment.

La cartographie des champs fut ma porte d'entrée dans le monde de l'holographie électronique. J'ai depuis travaillé sur le mode multi-biprisme qui permet d'augmenter sensiblement le champ de

vue utilisable pour l'holographie¹⁶. Nous avons également fait des tests d'utilisation instantanée des deux goniomètres pour mettre en place une production de contrastes de Moirés à partir de deux échantillons positionnés en même temps dans la colonne^{Mar16,Cam15}. Enfin, nous avons entrepris avec Charudatta Phatak de l'Argonne National Lab à Chicago de mettre en place un protocole détaillé pour la comparaison des différentes variantes de la version *in line* de l'holographie que nous avons tous les deux développée durant nos années de thèse. Nous avons également caractérisé le pouvoir de résolution absolu qu'il est possible d'atteindre avec la nouvelle configuration à double goniomètre en réalisant des clichés haute-résolution dans ce mode normalement limité à quelques nanomètres de résolution (Fig.I.4).

L'interférométrie holographique est une technique utilisée depuis de très nombreuses années dans la microscopie photonique¹¹⁴ mais également très usitée aux débuts de l'holographie électronique quand il n'existait pas de caméra CCD et qu'il fallait reconstruire les hologrammes à partir de bancs optiques^{128,129}. Le principe est de produire des Moirés à partir d'une superposition d'états dans le même hologramme pour générer une perturbation des franges directement visible dans l'hologramme. L'utilisation de la microscopie *in situ* nous a permis de mettre en évidence que cette double exposition pouvait être étendue à de l'holographie moyennée dans le temps s'il était possible d'exciter suffisamment rapidement le système pour le faire osciller entre 2 états^{Mas15}. Cette technique ouvre ainsi à la voie à l'exploration du domaine fréquentiel¹¹⁰. Dans le cas de la tête d'écriture d'un disque dur, nous avons sondé le champ magnétique généré quand la tête est soumise à une excitation de l'ordre du kHz . C'est notamment à travers ces expériences que nous avons ressenti le besoin de développer l'injection de signaux haute fréquence dans le microscope (la tête d'écriture étudiée fonctionne à une fréquence nominale de 2.1 GHz).

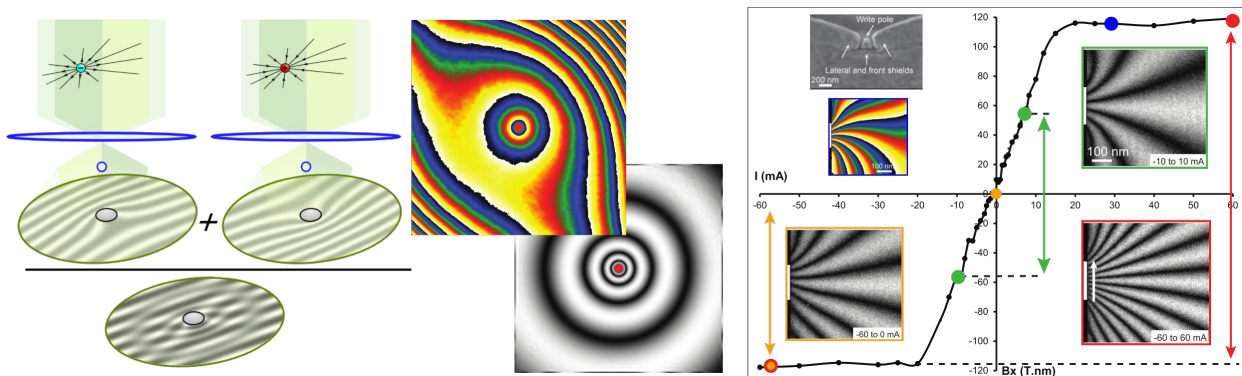


FIGURE I.5 – (G)Principe de la superposition de 2 états physiques (charge ponctuelle) opposés dans un même hologramme. La reconstruction d'une phase (image en couleur de température) n'est pas nécessaire (et complexe *in fine*) car l'hologramme contient déjà l'information voulue, mis en valeur ici en appliquant un simple filtrage de Fourier. (D) Exemple de réalisation avec une tête d'écriture de disque dur où un courant peut être injecté dans les 2 sens. On peut parcourir le cycle du champ rayonné (ici sa composante normale au pole) pour reconstruire de manière quantifiée le flux magnétique émis

iii Les Porte Objets

Une composante importante de mon projet de recherche porte sur la multi-instrumentation d'objets dans le TEM. Le corollaire instrumental est donc l'ajout de connexions entre l'objet et l'extérieur de la machine et donc la réalisation de porte-objets dédiés.

Le nano-adressage implique l'ajout d'impédances qu'il faut pouvoir maîtriser afin de connaître la puissance requise ainsi que le stimuli réellement envoyé dans l'échantillon. La Fig. I.6 résume les dif-

férentes impédances en jeu que nous avons identifiées et commencé à caractériser. C’est notamment leur réponse fréquentielle qui nous intéresse désormais via un stage avec des étudiants de l’INSA de Toulouse que j’encadre avec Lucas Chapuis (Ingénieur Electronique) dans le contexte global de notre capacité à envoyer des signaux haute fréquence sur un échantillon ainsi que des pulses définis sur des temps inférieurs à 10 ns.

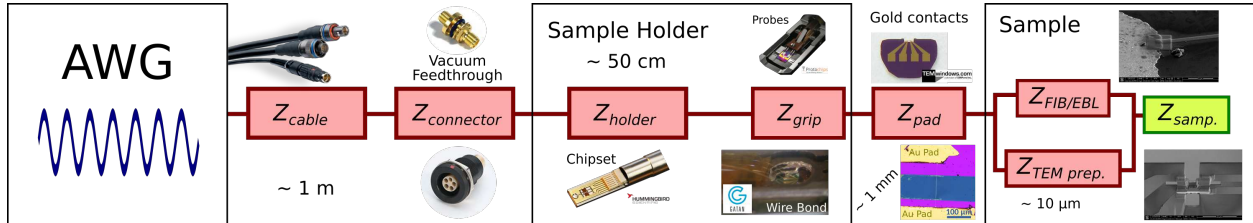


FIGURE I.6 – Descriptions des différentes impédances entrant en jeu depuis le générateur de signaux (G) à l’échantillon observé (D).

La plupart des porte-objets que j’ai élaboré l’ont été grâce aux services Mécanique et Électronique de l’Institut Néel et du CEMES que je veux remercier ici tout particulièrement. Pour ne pas verser dans le catalogue il me faut me focaliser sur un exemple en particulier, aussi je n’aborderai pas ici le porte-objet pour les pointes MFM, le porte objet multi-contact du JEOL 3010 de la PFNC de Grenoble, ou les divers porte-objets Gatan à 4 contact uniquement vendus pour posséder 4 contacts et qu’il a fallu adapter aux contraintes expérimentales. Celui dont je vais parler ici est un porte-objet dessiné pour les microscopes FEI-ThermoFisher, basé sur la technologie HDMI offrant une adaptation naturelle aux hautes fréquences. Les caractéristiques de ce porte-objet sont les suivantes :

- Extrémité du porte-objet (tête) réalisée à partir de la connectique μ -HDMI et donc montable/démontable à volonté
- Disponibilité de 14 connexions du protocole HDMI pour l’injection de signaux multiples (1 A max - cf. Fig. I.7(G))
- Deux connexions ont été dessinées pour accepter les signaux Haute Fréquence (3 autres connexions sont ainsi dédiées à la protection de ces 2 conduits) pour atteindre le domaine du GHz (cf. Fig. I.7(D))

Une des contraintes est l’adaptation des têtes à d’autres techniques de caractérisation. La première mise en place a été réalisée en collaboration avec le LNCMI^{Mas12} pour pouvoir effectuer sur le même objet des analyses par microscopie électronique ainsi que des mesures de transport sous fort champ et à très basse température. Les têtes sont réalisées avec le service Électronique du CEMES à partir de connecteurs commerciaux (cf. Fig. I.7(C)). Elles sont interchangeable et deviennent la partie mobile et retirable qui regroupe l’ensemble de l’échantillon MET et son environnement électrique. L’accent est donc mis sur la minimisation des coût engendrés et ainsi demeurer sous la barre symbolique de 100 e pour un échantillon.

J’ai dû (et je dois encore) faire face à de nombreux problèmes de compatibilité des matériaux, ainsi qu’à de nombreux problèmes de vide, d’électronique et d’adaptation d’impédance qui ont beaucoup retardé les premières expériences. Néanmoins, ce fil rouge de mon activité depuis la fin de ma thèse devrait permettre de proposer très bientôt des cellules entièrement instrumentées et modulables à façon. Nous sommes actuellement en train de dessiner les expériences de caractérisation en fréquence sur nano-objets réels.

J’ai résumé une partie fondamentale de mon activité de ces dernières années, où j’ai partagé mon temps entre les ateliers, les salles blanches et les salles des microscope et j’ai travaillé autant sur les logiciels de conception que les outils de traitement d’image. Néanmoins j’ai réussi à explorer deux champs de recherche qui m’ont amené à construire le projet que je présenterai dans le prochain

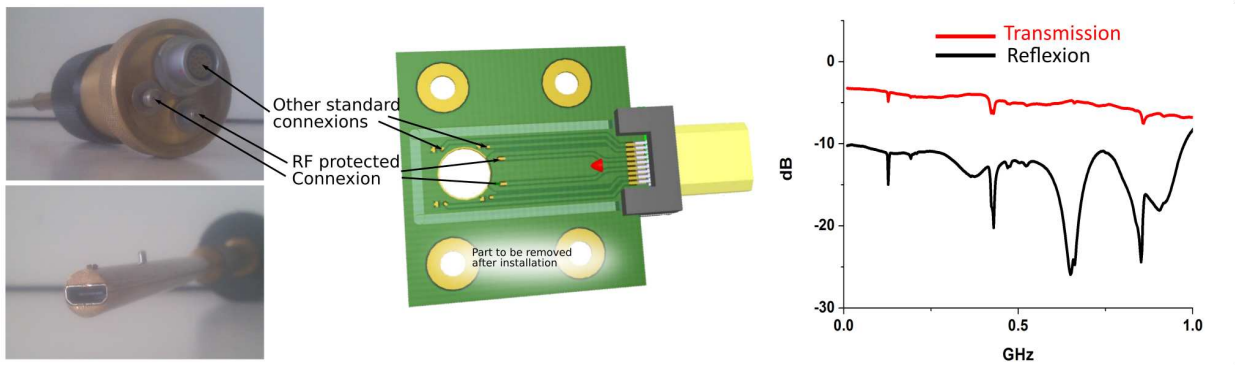


FIGURE I.7 – Porte-objet pour l’injection de signaux multiples. (G) Images du porte-objet coté extérieur (haut) et pièces polaires (bas). (C) Dessin de principe d’une tête sur circuit imprimé. (D) Premières études en fréquence de la réponse des pistes protégées

chapitre. Lors de l’inscription des étudiants à l’école QEM (**Quantitative Electron Microscopy**) que j’organise depuis 2013, nous demandons systématiquement aux impétrants la technique de microscopie à laquelle ils s’identifient et leur matériau de prédilection. C’est ainsi sûrement à travers le prisme de cette approche que j’ai choisi de subdiviser mes contributions scientifiques en 2 parties : la première dédiée aux matériaux carbonés et la deuxième aux ferromagnétiques.

I.2 Les méta-Carbones

Depuis la (re¹³²-)découverte par Iijima des nanotubes de carbone¹¹⁹, plusieurs prix Nobel sont venus corroborer les énormes enjeux des allotropes du carbone^{112,148}. Que ce soit leurs propriétés électriques fascinantes (haute mobilité, filtrage en spin, fort courant à faibles dimensions) couplées à leur potentielle intégration dans les technologies de la micro-électronique ou à la transparence du graphène pour son utilisation dans le photovoltaïque, leur fonctionnalisation aisée pour des application dans le stockage d’énergie, les capteurs ou la catalyse sans parler de leurs propriétés mécaniques remarquables, il n’existe pas une application révolutionnaire dans presque toutes les technologies de pointes qui ne fasse intervenir les allotropes du carbone : fullerène (0D), nanotubes (1D) ou graphènes (2D).

J’aborderai dans cette partie surtout mon travail autour des nanotubes mais une part non négligeable de mon activité s’est concentrée sur le graphène et les matériaux 2D. Je n’en donne ici qu’un très bref résumé.

a Graphenes et Matériaux 2D

Les Graphènes et par récente extension les autres matériaux 2D (MoS_2 , BN , WS_2 , $MoSe_2$) ont depuis toujours été utilisés empilés en feuillets pour leur propriétés mécaniques et surtout lubrifiantes¹⁷⁷. Les promesses multiples dans les STICs des feuillets isolés de part leur résistance mécanique¹²⁶, leur conductivité, leur bienfait dans les composites^{97,156}, leur transparence¹³⁰ ou leurs propriétés électronique malléables¹³⁶ associées à une potentielle "facilité" de production et d’intégration vis à vis des standards de la micro-électronique¹⁰⁴ ont rapidement fait de ces matériaux la solution idoine à de nombreuses limites actuelles. Les propriétés intrinsèques de ces feuillets atomiques ont été sondées très rapidement par la microscopie électronique en transmission offrant une manière efficace et relativement simple de les observer à l’échelle de l’atome, et nous avons consommé de nombreuses heures à tenter d’apporter notre contribution à la compréhension de leur structure.

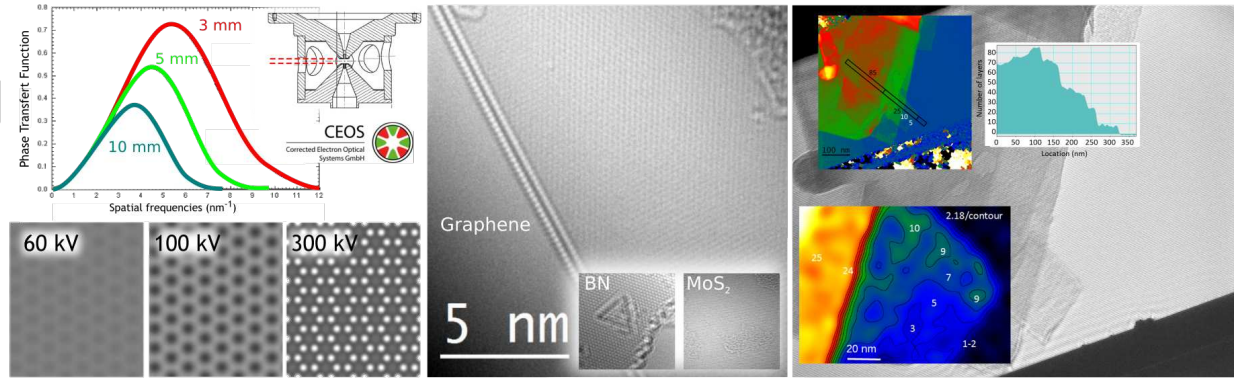


FIGURE I.8 – (G) Problématique de l’aberration chromatique C_C dépendant du *gap* des pièces polaires de la lentille objectif. Le Gap de l’I²TEM est à 11 mm : cette aberration limite donc les capacités de la machine car les hautes fréquences, porteuses de la résolution spatiale, sont rapidement coupées dans la fonction de transfert. De plus ce phénomène, qui varie en $1/U_{acc}$, s’accroît à basse tension comme le montre une simulation sur le Graphène pour différentes accélérations U_{acc} . Simulations effectuées par M. Linck - CEOS (C) Clichés Haute Résolution obtenus sur divers systèmes 2D à 80 kV qui semblent corroborer les limites entrevues avec la simulation. (D) Expériences d’Holographie sur un échantillon de graphène produit par exfoliation. La méthode permet de cartographier avec précision le nombre de couches de graphène dans le flocon considéré.

Le dénombrement et la mesure d’épaisseur dans les matériaux 2D est l’une des applications de l’holographie par sa sensibilité aux potentiels électrostatiques générés par les échantillons très fins comme les nouveaux matériaux 2D^{100,172}. J’ai encadré et formé à l’Holographie Électronique à basse tension 2 post-doctorants^{Cas12,Kob11} car l’utilisation de l’holographie était à mon sens devenue indispensable pour pouvoir de manière sûre déterminer les empilement observés par les très nombreuses voies de production existantes (cf. Fig.I.8(D)). S’il est ressorti de ces études le constat décevant que le CEMES n’est, à l’heure actuelle, pas équipé pour l’observation structurale fine (sub-nanométrique) de ce type de matériaux (cf. Fig.I.8(G)), ces études nous ont amenés à explorer diverses sources de « graphène », du CVD à l’exfoliation (en passant par le graphène en spray) et de relier nos mesures de dénombrement à des clichés Haute Résolution^{Nun15} et de Diffraction pour comprendre l’origine du déphasage en fonction du type d’empilement des feuillets. Nous avons également obtenu des standards de potentiel pour d’autres matériaux 2D : les différents types de domaines (métallique ou semiconducteur) du MoS_2 ou la distinction entre les différents variants dans des monocouches de Nitrure de Bore BN (cf. Fig.I.8(C)). Cette activité sera notamment au cœur de l’analyse de structures nouvellement à l’étude : les *DogBones* où un nanotube simple paroi de grand diamètre s’écroule sur lui-même pour former 2 canaux latéraux que nous tentons actuellement de remplir de façon sélective^{Ewe16,Cer18}.

b Nanotubes de carbone

Les nanotubes de carbone (CNT - Carbone NanoTubes) offrent depuis leur découverte initiale par Iijima comme "des microtubules¹⁵¹ synthétiques à fort potentiel d’intégration biologique" des promesses de nouvelles formes de transistors¹⁷⁴, de stockage d’énergie^{88,98,144,171} ou alors le renforcement des propriétés physiques des matériaux composites^{139,176,Bra15}. Ma principale motivation autour de ceux-ci tient dans leurs propriétés émissives pour les futures sources d’électrons (canons mais également tubes à rayons X ou futurs écrans à sources multiples)¹⁰² mais également pour leurs propriétés de transport⁹⁹. Ces structures unidimensionnelles quasi idéales peuvent également être *fonctionnalisées* pour exalter encore plus ces diverses propriétés. J’aborde ici différentes formes de méta-nanotubes¹³¹ : dopage, remplissage et décoration.

i Les Nanotubes dopés

Le dopage des nanotubes¹⁰⁵ peut leur conférer des propriétés émissives bien supérieures aux nanotubes dits *pristine*¹⁶⁷ : le dopage réduit ainsi le travail de sortie des électrons (autour de 5eV pour les CNTs⁵) par création d'une affinité électronique négative¹⁶⁸. Notre étude¹⁹ se situe au cœur du projet de recherche LASCAR^{Cha17} dont la finalité était le dopage de nano-carbones pour l'interaction laser-pointe carbonée. Le premier verrou fut de maîtriser les paramètres de dopage dans des conditions post-croissance, contrairement au dopage concomitant à la croissance comme réalisé traditionnellement. Rongrong Wang a mis en place des voies de dopage en utilisant les processus de carbothermie en phase gazeuse¹⁸ (azote - cf. Fig.I.9(a)) et solide (nitrure de Fer - cf. Fig.I.9(b)).

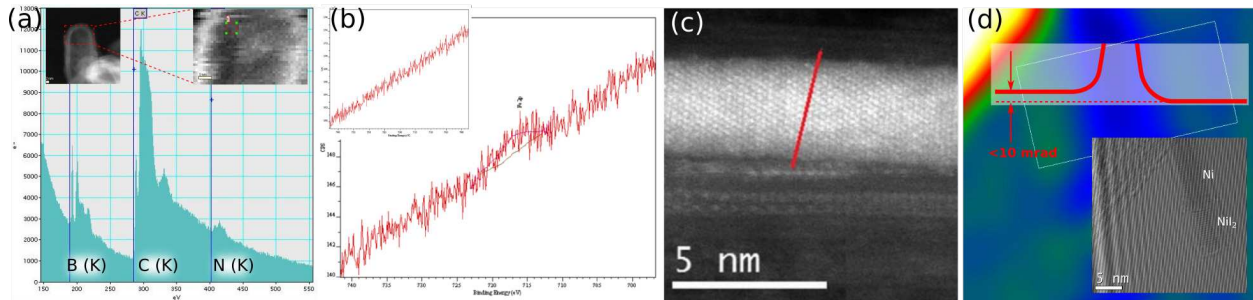


FIGURE I.9 – (a) Caractérisation par spectroscopie de perte d'énergie (EELS) de nanotubes BN dopés par un flux d'azote par réaction carbothermique. Le pic de perte d'énergie de l'azote est clairement visible (les inserts correspondent aux images STEM utilisées pour la spectroscopie). (b) Caractérisation par XPS des liens C=N dans des nanotubes dopés en phase solide par nitrure de fer. Le pic est très faiblement visible mais démontre bien qu'un dopage a eu lieu (l'insert montre un autre échantillon, réalisé à une autre température, où le dopage n'a pas eu lieu). (c) Nanotube double parois rempli avec du nickel (*image S. Nie*). (d) Image de phase (hologramme correspondant en insertion) obtenue après soustraction de 2 états de saturation opposée. La courbe de profil montre la variation mesurée dans la phase, du même ordre de grandeur qu'attendu, mais trop proche de niveau de bruit pour être valide.

Des études structurales systématiques nous ont d'abord permis de démontrer la faible incidence de ce type de dopage sur la structure de nanotubes issus de diverses sources^{Wan16}. Notre capacité à inclure des hétéro-atomes dans des nanotubes nous a donc poussé à essayer d'effectuer ce dopage dans des nanocones de carbone (voir section dédiée) mais nous nous sommes heurtés au problème de la récupération des produits de la réaction. Des méthodes de solubilisation de ceux-ci devront être mise en oeuvre.

ii Les Nanotubes remplis

Ces nanotubes ont été un objet d'intérêt pour leur effet sur le magnéto-transport notamment pour mettre en évidence l'effet magnéto-Coulomb⁹⁹. Le remplissage par intermixture vide en traitement thermique a nécessité une partie non négligeable de la thèse de S. Nié^{Nie16} pour favoriser la production de nanotubes remplis de matériau ferromagnétique (nickel principalement). La caractérisation par Holographie Electronique de ces structures nous a confirmé les limites en sensibilité de cette technique pour de si faibles volumes magnétiques (cf. Fig. I.9(d)) qui nécessitent des analyses plus poussées pour l'observation de si petits nano-aimants. Les méthodes développées par C. Gatel pour augmenter la sensibilité des mesures en holographie sont actuellement en cours pour tenter de démontrer une sensibilité à de si faibles clusters magnétiques (protégés de l'oxydation par les parois du nanotube).

C'est dans le cadre de cette thèse que nous avons lancé les campagnes de connexion de nanotubes remplis dans le microscope : en effet la seule méthode acceptable pour s'assurer de l'adressage d'un nanotube effectivement rempli est la microscopie STEM-HAADF (cf. Fig. I.9(c)). Nous avons

donc mis en place une procédé de nanofabrication permettant l'observation des nanotubes avant/ou après leur connexion aux électrodes. Abraao Cerfas en post doc pour le projet EdgeFiller a repris les méthodes mises en place pour effectuer ces expériences [Cer18](#).

iii Nanocones de carbone

Les nanocones de carbone sont des méta-nanotubes se décrivant comme un dépôt de carbone pyrolytique sur nanotube multiparoï (*Py@MWNT*) mais que nous préférons dénommer CCnT (pour *Carbon Cone nanoTip*). Ces objets sont constitués d'un nanotube multiparoï (5 à 10 nm de diamètre) dont la croissance est assurée par CVD et sur lequel est ensuite déposé du carbone pyrolytique en phase liquide (par CVD *temps de vol*) qui, par un mécanisme associé aux instabilités de Plateau-Rayleigh, se cristallise en nouveaux tubes concentriques de longueur régulièrement décroissante, donnant naissance à une structure de cône cristalline. La caractéristique fondamentale de ces cônes est d'offrir un nanotube nanométrique à une extrémité et une fibre de carbone micrométrique à l'autre et donc facilement manipulable.

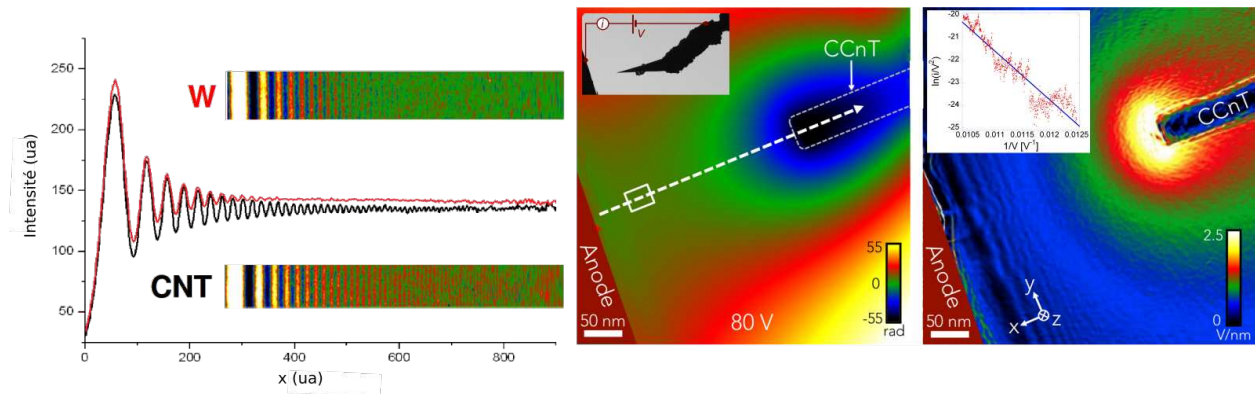


FIGURE I.10 – (G) Observation des franges d'interférence produites par la diffraction sur un bord épais pour une source W standard et la nouvelle source CCnT. (D) Holographie in situ d'un CCnT en cours d'émission. Le gradient de l'image de phase (à gauche) donne une cartographie quantifiée du champ électrique projeté (droite). Ceci est couplé à une courbe de Fowler Nordheim (insert) pour déterminer le facteur d'exaltation du champ électrique et finalement déduire la valeur du travail de sortie des CCnT.

Nous avons utilisé ces objets pour réaliser de nouvelles sources à émission de champ. Ces travaux nous ont mené à la construction d'un premier banc de mesure qui a permis d'effectuer la caractérisation complète des propriétés émissives de ces CCnT puis son installation dans le canon d'un MET⁸. Il en est sorti une stabilité et une brillance accrue et donc des capacités interférométriques bien supérieures aux pointes tungstène (W) standards (Fig. I.10(G)). Ces résultats ont fait naître un intérêt chez un constructeur de microscope : Hitachi High Technology. Ainsi Florent Houdellier a pu nouer des contacts privilégiés avec eux pour l'implémentation d'une telle technologie dans des microscopes commerciaux. Le premier bénéficiaire d'une telle collaboration est le test de ces pointes selon des critères industriels, donnant notamment accès à des tests (fiabilité, durée de vie, courant de sonde notamment) nous étant jusqu'alors impossibles⁷. Ces travaux sont encore en cours, et se rapprochent petit à petit d'une solution commerciale tant nos premières mesures de stabilité étaient finalement sous-estimées et intéressent Hitachi High Technology au plus haut point. Nous avons également détaillé plus finement les processus émissifs par l'utilisation de l'holographie électronique in situ permettant une étude locale du champ électrique prenant place à l'extrémité de la pointe. Ces études ont permis notamment de confirmer très précisément le travail de sortie de tels systèmes ($\phi = 4.8 \pm 0.3eV$), paramètre majeur de l'émission⁵. Ces travaux ont été l'une des principales composantes de la thèse de Ludvig de Knoop [Kno14](#). Enfin, ces structures ont également fait naître un intérêt certain pour l'interaction de champ fort

qu'il était possible de caractériser à l'aide du champ électrique produit par des impulsions laser. C'est le coeur du projet Lascar^{Cha12}. Outre les nouveaux processus d'émission mis en lumière par une telle interaction (Fig. I.11) il serait possible d'émettre des harmoniques à très haute fréquence^{Bio15} (attoseconde). Ce projet a permis la construction de deux nouveaux bancs de mesure, couplés pour les études statiques (au CEMES) et dynamiques (à l'IRSAMC)¹. Les premières expériences sur les CCnT nous ont montré l'importance de la gestion de l'énergie globale apportée par le laser². Dans le cadre du même projet nous avons exploré la possibilité d'abaisser le travail de sortie du carbone pour pousser encore plus loin les capacités émissives des CCnT en les dopant^{Wan16}.

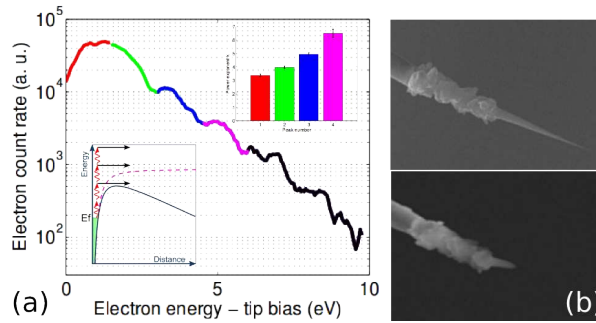


FIGURE I.11 – Émission d'électrons au delà du seuil (Above Threshold emission - ATP) où un électron absorbe de multiples photons pour traverser la barrière de potentiel. (a) Processus ATP caractérisé sur pointe W. Le nombre de photons absorbés par les électrons est ainsi déterminé par une analyse spectrale du faisceau émis. (b) Image d'une pointe avant (haut) et après (bas) un test d'émission laser. Les premières expériences menées sur les nanocones ont avant tout démontré la nécessité d'adapter les conditions de puissance du laser pour exploiter ce nouveau matériau très différent des pointes d'or ou de tungstène couramment utilisées.

Si j'ai commencé à m'intéresser aux matériaux carbonés de façon intensive après mon entrée au CNRS, j'ai toujours gardé une place pour l'imagerie magnétique et le micromagnétisme en particulier. Je vais donc conclure ce premier chapitre avec une revue de différentes études réalisées notamment grâce aux développements présentés jusqu'ici. Mon intention n'est pas de dresser un catalogue mais plutôt d'illustrer les capacités et limites actuelles de l'imagerie magnétique en MET, pour introduire le chapitre suivant.

I.3 Nano et micromagnétisme

J'ai démarré mon parcours scientifique avec le développement de la microscopie de Lorentz et les objets du micromagnétisme¹¹⁸. Le domaine de résolution spatiale de la microscopie est situé exactement dans la gamme des tailles de ces objets (parois, vortex) que l'on peut définir avec la longueur d'échange des matériaux usuels. Il reste néanmoins à analyser ces objets avec suffisamment de sensibilité pour en apprécier à la fois la distribution dans une couche mince ou une nanostructure, et à la fois sonder leur structure interne. Et il faut surtout quantifier les grandeurs magnétiques en jeu. L'holographie électronique est sensible principalement à l'*induction* (densité de flux magnétique) \vec{B} *perpendiculaire* au faisceau d'électrons mais, comme nous l'avons vu plus haut, il peut être difficile de donner des chiffres exacts sur ce que permet ou ne permet pas de sonder cette technique (nous n'aborderons pas ici le dichroïsme électronique¹⁶⁹, permettant de sonder directement l'aimantation). Nous préférons généralement donner la sensibilité de l'holographie en terme de limite de détection dans la phase, en mrad :

D'une manière générale, un signal supérieur à 100 mrad est aisément détectable, un signal de quelques dizaines de mrad devient plus difficile à apercevoir, et le mrad demeure de l'ordre de l'expérience parfaite.

Néanmoins de nombreux autres paramètres rentrent en jeu quand il s'agit de donner une réponse

tranchée sur la possibilité ou non d'une analyse magnétique MET : l'orientation du flux à sonder dans l'objet, le volume magnétique à sonder, la capacité de l'échantillon à supporter les champs magnétiques parasites (ceux du microscope et ceux subit durant le transport de l'échantillon jusqu'au microscope) ou le bombardement électronique à haute énergie sont autant de facteurs qui peuvent influencer la réponse. Les résolutions et sensibilités actuelles des instruments nous amènent désormais vers des volumes toujours plus petits où la limite super-paramagnétique est parfois la raison unique de l'absence de signal.

Une autre difficulté dans la définition d'une sensibilité absolue de la technique est que la microscopie sonde principalement les variations (gradients) du flux magnétique. La résolution spatiale entre donc en jeu dans cette quantification de la sensibilité puisqu'il est illusoire de sonder sur une distance inférieure à 1 nm avec les microscopes actuels de même qu'il faut garder à l'esprit que nous parlons alors d'une épaisseur limite pour la détection ($1 \text{ T} = 1 \text{ Wb.m}^2$). Notre approche consiste donc à donner également des valeurs de gradients nécessaires pour la détection en mrad.nm^{-1} où la définition des limites de la microscopie électronique va varier d'un échantillon à l'autre mais suit les valeurs données ci-dessus pour peu que la résolution spatiale soit effectivement de l'ordre du nm. Le tableau ci-dessous propose une traduction de ces chiffres dans des termes plus adaptés aux unités usuelles du magnétisme.

$$\begin{array}{c} 1 \text{ rad} = \\ 1 \text{ mrad.nm}^{-1} = \end{array} \left| \begin{array}{c} \frac{\pi}{\Phi_0} \\ 56 \mu_B \end{array} \right| \left| \begin{array}{c} 6,5 \cdot 10^{-16} \text{ Wb} \\ 0,3 \text{ nm de Fe small } (\mu_0 M_S = 2 \text{ T}) \end{array} \right| \left| \begin{array}{c} 658 \text{ T.nm}^2 \end{array} \right|$$

Nous avons prévu avec Bénédicte Warot, au travers d'un projet en cours^{Mas21}, de pouvoir donner une définition la plus universelle possible de cette sensibilité vis à vis des autres techniques d'imagerie magnétique.

Je vais présenter ici diverses études que j'ai pu mener durant ces dernières années. J'espère ainsi donner une certaine forme d'exhaustivité sur ce qu'il est actuellement possible d'observer dans un MET en terme d'imagerie magnétique. Ces études ont notamment nourri la définition des limites donnée ci-dessus et elles me permettront surtout d'introduire le chapitre suivant qui présentera mon projet scientifique pour les prochaines années.

a Dimensionnalité du micromagnétisme

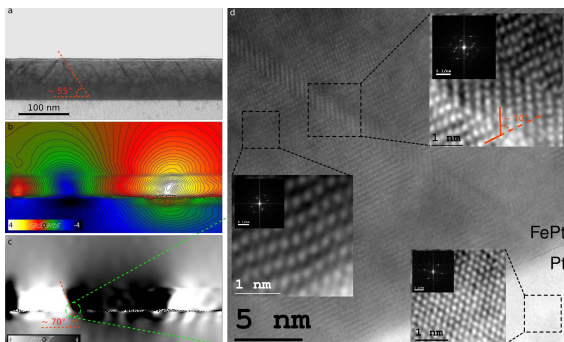


FIGURE I.12 — Cartographie magnétique d'une couche mince de FePt. Les micromacles, visibles en champ clair piègent le coeur des parois de Bloch magnétiques. L'angle des macles (55°), de la paroi (70°) ne correspondent pas. La correspondance est en fait avec l'inclinaison de l'axe c dans la macle comme observé en STEM-HAADF

L'aspect dimensionnel du micromagnétisme vient, comme pour les nanocarbone, avant tout des objets qu'il décrit : les domaines tridimensionnels de Weiss¹⁷⁰ sont séparés par des parois bidimensionnelles⁹³ elles même subdivisées par des lignes de Bloch unidimensionnelles, qui peuvent à leur tour se partager autour des points de Bloch auxquels on associe la dimension d'ordre 0. L'adéquation entre la taille de tels objets et la résolution spatiale de la microscopie nous a permis de voyager parmi ces dimensions. Je voulais donc introduire l'imagerie magnétique dans un MET en partant des parois que j'ai beaucoup étudiées dans les films minces^{MH17,MA16a}, et présenter ici un travail mené sur le couplage entre paroi et structure du matériau.

L'alliage Fer-Platine a longtemps été considéré comme un des candidats les plus crédibles à l'intégration haute densité des points mémoires dans des films continus. Nous avons réussi, notamment au travers du travail de Violaine Salvador^{Sal09} à caractériser de manière précise la position, la structure, et le lieu de piégeage de ces parois. Si comme attendu celles-ci se déforment pour s'adapter au défaut structural de piégeage, les micro-macles, nous avons pu mettre en évidence que le coeur de paroi ne s'alignait non pas avec l'orientation de ce défaut dans le film mais bien avec l'axe c à l'intérieur de celui-ci (cf. Fig.I.12).

La structure fine des parois est accessible moyennant des analyses poussées des clichés de microscopie. Nous avons déjà pu observer qu'une paroi pouvait elle même changer de chiralité par la propagation d'un vortex³, ou qu'une analogie entre paroi et vortex permettait d'observer une transition dimensionnelle entre ces deux objets du micromagnétisme¹¹. J'ai également pu construire une analyse complète d'une paroi asymétrique (cf. Fig.I.13) pour en donner non seulement sa largeur mais également avoir accès à ses différents variants qui constituent ses degrés de liberté, et donc potentiellement ses capacités de stockage¹³.

Le point de Bloch est une singularité où les équations de Maxwell ne s'appliquent plus. Par définition, il permet de séparer deux zones opposées d'une ligne de Bloch¹⁰⁶. Nous avons pu sonder son absence au coeur des lignes de Bloch verticales¹⁰ mais nous n'avons toujours pas réussi à le localiser avec la microscopie électronique. C'est actuellement un enjeu puisque le point de Bloch est au coeur des parois présentes¹⁰¹ dans les nanofils qui portent les promesses d'application de l'enregistrement par détection de parois empilées sous la forme de registres¹³⁸.

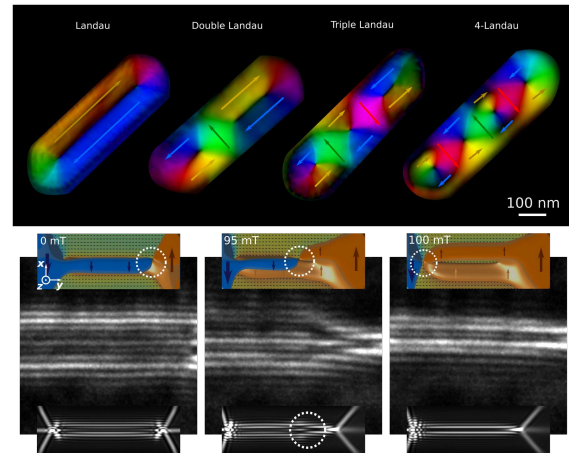


FIGURE I.13 — (Haut) Structure magnétique d'un plot de fer présentant plusieurs configurations. (Bas) Le retournement d'une paroi de Bloch asymétrique est assuré par translation d'un vortex de surface (images haut) que l'on peut détecter dans les contrastes de Fresnel (images centrales), comme démontré dans les simulations associées (images du bas).

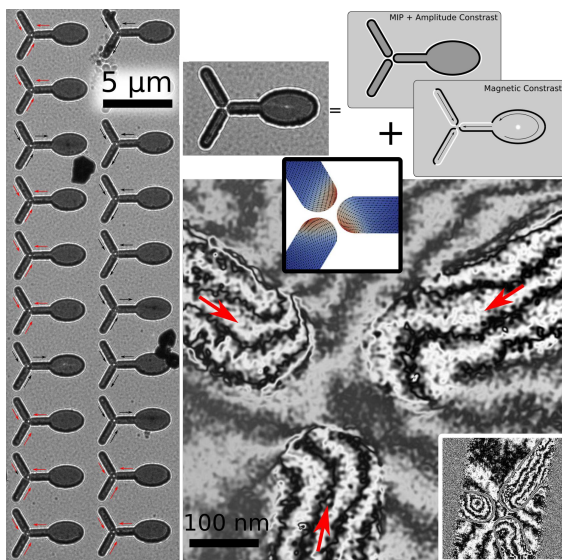


FIGURE I.14 — Frustration magnétique et monopoles. (G) Réseau de noeuds de frustration lithographiés sur membrane par imagerie de Fresnel. Les contrastes (expliqués en haut à droite) permettent de détecter aisément les états frustrés obtenus par application d'un champ suivant la direction horizontale. (D) Holographie réalisée sur une configuration frustrée où apparaît une chiralité, comme démontrée en élément finis pour de petits espacements (insert haut). Néanmoins ces configurations frustrées sont très rares, la majorité des observations montre une fermeture de flux sur l'un des bras (insert en bas à droite) pour contrer la frustration.

Pour aller plus bas, et ce de manière un peu artificielle, je voudrais conclure cette partie avec les monopoles magnétiques^{MA16d} prédits par Dirac et rendus accessibles de manière topologique avec les systèmes de frustration magnétique. Nous avons tenté de répondre à une question qui a émergé avec la prise en compte du micromagnétisme dans cette frustration : ces monopoles et les chaînes (ou cordes de Dirac) qui les lient ont-ils une chiralité ? Si cette chiralité était confirmée elle pourrait ouvrir de nouvelles formes de contrôle sur une éventuelle mise en place de la magnétrie. Nous avons donc tenté d'isoler puis de caractériser ces monopoles, et si nous avons effectivement pu observer cette chiralité, il demeure que celle-ci n'était pas adressable (il nous a été impossible de la manipuler) et que le micromagnétisme jouait un rôle plus que prépondérant dans la frustration en limitant les gammes de tailles que les nano-aimants pouvait prendre, la frustration disparaissant au pro-

fit de structures à fermeture de flux (cf. Fig. I.14, insert en bas à droite) pour minimiser les charges

magnétiques.

Pour aller chercher les détails les plus fins et isoler les objets les plus discrets du micromagnétisme, il est nécessaire d'être capable de produire le matériau ad-hoc, leur conteneur, et si possible avec des dimensions proches de leur longueurs caractéristiques. Je voudrais donc profiter de cette introduction pour présenter des méthodes d'élaboration de ces nano-objets qu'il m'a fallu adapter et développer.

b Matériaux de Pied en Cap

Je veux aborder ici diverses formes de la nanofabrication autrement couramment appelée approche "Bottom-Up" pour définir l'idée que la matière peut être structurée non pas depuis le monde macroscopique dans une optique de miniaturisation mais bien en partant de l'échelle atomique pour remonter vers le monde macro en traitant ses aspects structuraux et attributifs[†] de manière concomitantes durant l'élaboration.

Il n'est pas question de dresser un panel de méthodes d'élaboration mais bien de présenter l'adéquation de techniques émergentes aux enjeux de la microscopie en général et des problématiques micromagnétiques exposées dans cette section en particulier. Je veux illustrer ici l'apport indéniable et nécessaire de la nanofabrication dans la microscopie électronique in-situ.

i Le dépôt de matière assisté par faisceau énergétique

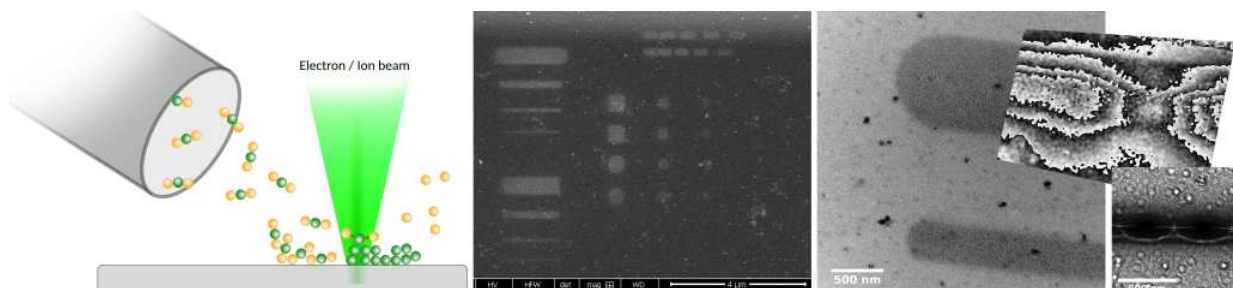


FIGURE I.15 – (G) Principe du dépôt assisté par un faisceau énergétique. (C) Image MEB après dépôt. (D) Imagerie TEM des structures déposées avec Holographie électronique (en haut) et contrastes de Fresnel (en bas) pour étudier leur configuration magnétique

Qu'il soit électronique (EBID) ou ionique (IBID) le dépôt assisté permet de façonner la matière à l'échelle nano avec une facilité déconcertante par l'utilisation des machines à faisceau focalisé d'électrons (SEM) et d'ions (FIB) généralement couplées dans le même instrument. L'utilisation d'un précurseur adéquat permet de déposer (mais aussi d'assister une gravure par un processus de type RIE) un métal avec une précision de l'ordre de grandeur de la taille du faisceau utilisé. *En règle générale* une chaîne aromatique, encapsulant un cation métallique, est dégradée par le faisceau puis aspirée par le système de pompage et laisse le métal s'adsorber sur la surface.

De nombreuses études ont été menées à l'INA de Zaragoza pour l'étude des propriétés physiques de tels dépôts¹⁰⁷, et notamment les propriétés magnétiques des dépôts de Cobalt¹⁵⁴. Dans l'optique de proposer des dessins de structures complexes je vais dresser ici les paramètres influant sur la qualité du dépôt :

⇒ *Densité de Précurseur* : Cette densité influe sur le renouvellement du gaz nécessaire au dépôt et donc sur la pureté du dépôt obtenu. Elle est réglée par la proximité de la buse vis à vis

[†]. J'ai longuement cherché l'adjectif dérivé de propriété - au sens de qualité propre. Le terme *proprétal* n'existant pas, et l'*idiosyncrasisme* étant plutôt dévolu aux êtres humains, j'ai choisi celui-ci, mais suis à la recherche d'une proposition qui me satisfasse.

du point de focalisation mais également avec la pression résultante de la chambre permettant d'ajuster le flux de précurseur.

⇒ *Énergie du Faisceau incident* : Cette énergie dépend de très nombreux paramètres. L'énergie des particules et leur courant définissent notamment la taille du spot et la dose (que l'on associera à l'élévation locale de la température). Des paramètres encore plus importants sont ceux de scan : temps de pose du faisceau en chaque point, recouvrement entre 2 points, taux de répétition, sont autant de paramètres qu'il faut ajuster pour obtenir un dépôt optimum.

J'ai réalisé plusieurs études pour déterminer d'un côté la résistivité optimum de nano-contacts déposés directement entre 2 contacts d'Or et de l'autre la pureté en Cobalt de dépôts à géométrie complexe. La résistivité "bulk" des principaux métaux utilisés en dépôt assisté (W, Pt, Co) est de l'ordre de 5 à 10 $\mu\Omega.cm$ (en comparaison, l'Or est à 2.3) mais monte à plusieurs dizaines de $\mu\Omega.cm$ pour les dépôts IBID et plusieurs centaines de $\mu\Omega.cm$ pour les dépôts EBID.

Un point très important est l'aspect *boîte noire* du dépôt IBID ou EBID du fait de l'avancée technique des machines actuelles. Il peut donc être complexe de déterminer les paramètres pertinents à un bon dépôt. Les paramètres de scan sont par exemple difficiles à appréhender et nécessitent d'explorer les réelles positions du faisceau lors du processus (très court) d'un dépôt. La résistivité électrique la plus faible a ainsi été mesurée (60 $\mu\Omega.cm$) pour un dépôt IBID de Tungstène avec des ions de forte énergie (30kV), un courant modéré (qqs dizaines de pA) et en maximisant la position du faisceau en chaque point plutôt qu'en multipliant le nombre de passages. La Haute énergie permet avant tout d'améliorer la forme de la sonde ionique. Un courant trop élevé va quant à lui générer un dépôt "encapsulant" trop rapide, qui piégera des espèces non métalliques. Enfin il est devenu évident qu'il faut un laps de temps très important (supérieur à la durée classique d'un dépôt ; de l'ordre de la minute) avant d'irradier la même zone pour laisser le gaz se régénérer. Le dépôt idéal est ainsi effectué en points par points successifs avec recouvrement optimum de ceux-ci. Le cobalt ferromagnétique le plus pur qu'il a été possible d'obtenir (> 96% de Co) dans des structures complexes (dessinées via une image matricielle) l'a été pour une résolution du dessin de l'ordre de 0.5 fois la taille du faisceau d'électrons (ce qui correspond à une image avec une résolution de 10⁷ dpi pour un faisceau d'une taille de 5nm).

Si ce type de dépôt local est très intéressant pour du prototypage rapide de nano-objets pour la MET, il demeure un point bloquant que l'on retrouve également avec les techniques de lithographie électronique : une majorité de la zone imagée par le faisceau électronique du MET est vierge et surtout isolante. Cette grande surface va alors se charger (en trous majoritairement¹¹¹, par l'émission d'électrons secondaires) et un champ électrique va apparaître dans la zone considérée. Une méthode pour éviter ce genre d'écueil est le *lamage* d'une couche mince, où l'on va venir évaporer la matière autour de l'objet à dessiner, sur une distance suffisante pour éviter l'interaction magnétique entre

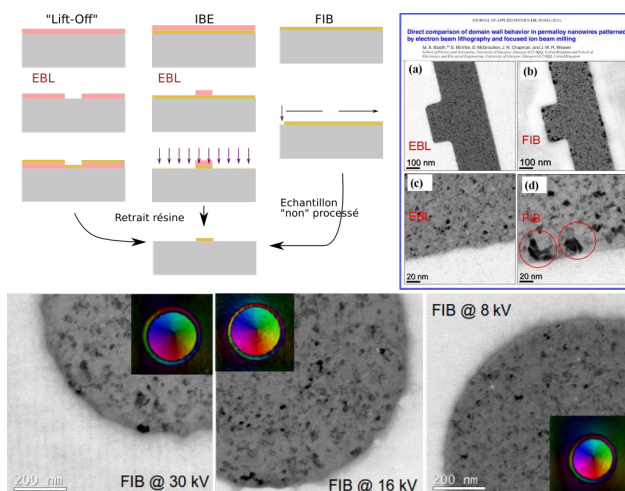


FIGURE I.16 – (A) Méthode de *lamage* par FIB comparée aux méthodes traditionnelles de "lift-off" et de gravure IBE (Ion Beam etching) requérant l'utilisation de la lithographie (EBL). (B) Comparaison de 2 techniques via l'analyse TEM en vue Transverse. Cette étude a notamment démontré l'apparition de nano-cristaux par irradiation latérale due au FIB. (C) Étude de ce phénomène d'irradiation latérale en fonction de l'énergie des ions utilisés. Les inserts sont des reconstructions focales pour démontrer la préservation de l'intégrité magnétique des nanostructures.

l'objet ainsi dessiné et la couche restante. Cette couche assurera alors l'évacuation des charges générées par le faisceau d'électrons.

ii Lithographie Ionique vs Electronique

Une utilisation moins courante du Faisceau d'ion focalisé est la définition de structures nanométriques sans résine. Il permet de réaliser une gravure localisée sans l'utilisation de la lithographie en évaporant localement la matière d'une couche déjà déposée.

Cette méthode n'est adaptée que pour du *proptotypage* d'échantillon et ne peut se substituer à la lithographie classique qui permet elle d'atteindre des champs de vue beaucoup plus grands. Néanmoins, elle permet rapidement de produire des échantillons pour la MET en effectuant ce type de gravure directement sur une couche déposée sur une membrane ultra-fine. Pour éviter l'irradiation d'une couche (ce qui peut être dramatique pour des échantillons magnétiques à anisotropie perpendiculaire par exemple) une telle technique nécessite un pilotage précis du faisceau afin d'obtenir un détournage de la structure envisagée : une simple gravure à travers une image bitmap ne permet pas d'éviter le passage du faisceau au dessus de la zone d'intérêt. De plus, la forte énergie des ions (30 keV en général pour obtenir une focalisation de l'ordre de 10 nm) induit une forte implantation latérale qui va modifier localement la structure (et donc les propriétés physiques)⁸⁹. Les nouveaux microscopes actuels permettent néanmoins d'obtenir de bonnes résolutions à faible énergie. La Fig. I.16 montre des essais de lithographie FIB à différentes tensions et un gain qualitativement appréciable pour la structure ainsi dessinée.

c Mouvement de parois

Les premières visions de l'intégration des parois dans des systèmes à mémoire¹³⁸ l'ont été à partir des rubans ou structures 1D à section rectangulaire, facilement réalisables à l'aide de la nanofabrication et des techniques présentées ci-dessus. Néanmoins il a été rapidement démontré que les fils à section circulaire portaient des promesses d'intégration bien plus vastes, notamment pour la stabilité des parois qu'on y trouve¹⁶². Néanmoins, je voudrais commencer cette présentation avec un système que nous avons longuement étudié et basé sur une section rectangulaire.

i Nanorubans

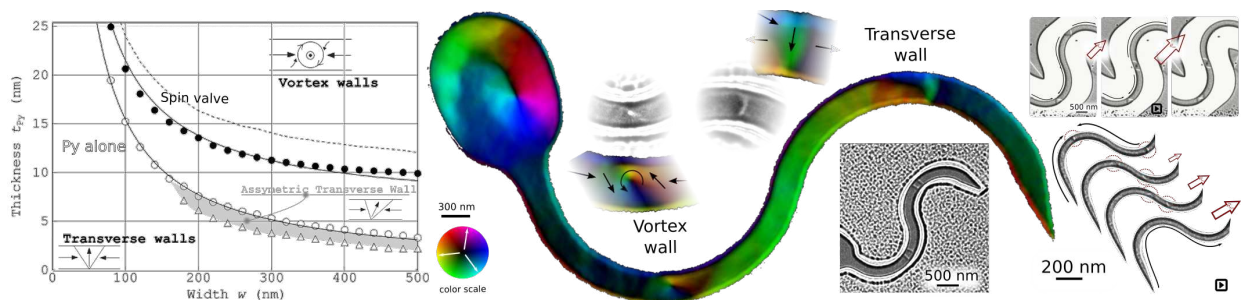


FIGURE I.17 – (G) Diagramme de phase des structures Py/Cu/Co comparé au Py seul. La structure en vanne de spin favorise la stabilité des parois transverses mais tend à former plus facilement des parois asymétriques. (C) Cartographie d'une structure présentant un réservoir pour la nucléation de parois, et les 2 parois attendues : Vortex et Transverse asymétrique. Néanmoins il a été très vite observé que des parois apparaissaient dans les 2 couches ferromagnétiques (insert en bas à droite). (D) Revenant sur la structure Py seule, nous avons tenté d'observer le déplacement de parois transverses et avons observé la transformation des parois transverses vers l'état vortex. Par contre cette transformation apparaît aussi bien avec un mouvement que sans mouvement de la paroi (Haut - vidéo en ligne). (D-bas) Une autre analyse sur la structure Spin valve montre une importante *activité* dans l'autre couche ferromagnétique et qui semble agir sur la propagation dans la couche douce. (Bas - vidéo en ligne)

Les parois dans un fil à section rectangulaire (ou ruban) peuvent adopter 2 configurations de base : la paroi transverse et la paroi vortex (cf. Fig.I.17(b)), chacune occupant une partie du diagramme de phase dimensionnel (épaisseur vs largeur). Ce diagramme est ainsi coupé en 2 par une ligne iso-énergétique autour de laquelle la paroi peut osciller (cf. Fig.sv(d)) à partir d'une certaine vitesse et ainsi la ralentir : c'est la limite de Walker⁹⁶. Une des idées proposées pour contrer cette limite a été l'utilisation de structures à vanne de spin (Ferro-Metal-Ferro) plutôt qu'une simple couche ferromagnétique. Des vitesses 10 fois plus importantes ($> 100 \text{ m/s}$) ont été rapportées¹¹³ grâce notamment à un déplacement de cette frontière iso-énergétique vers le haut¹⁵⁰ (cf. Fig.sv(a)). C'est notamment pour préserver cette structures en vanne de spin (Py/Cu/Co) que j'ai développé la lithographie par FIB pour étudier de manière systématique ces éléments dans des rubans. Nos analyses ont vite révélé que les 2 couches contenaient des parois qui interagissaient les unes avec les autres (cf. Fig.sv(c,e)) et donc un couplage magnétostatique¹⁶⁶ trop important. Une étude plus poussée de la dynamique ainsi accessible et l'analyse précise des contrastes nous a permis d'identifier les parois en présence dans les couches.

ii Nanofils

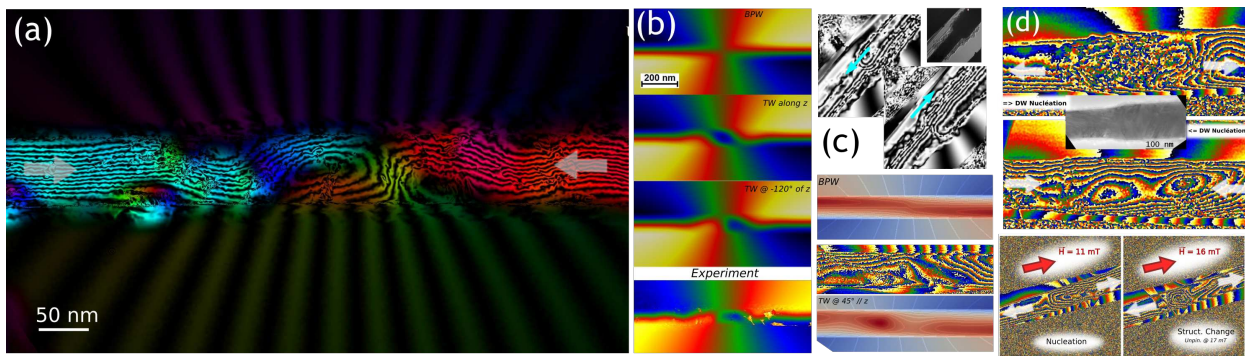


FIGURE I.18 – (a) Paroi transverse présentée en cartographie couleur à laquelle est superposée les contours de flux magnétique obtenus par un cosinus sur l'image de phase. (b) Pour comprendre la structure de la paroi, nous avons modélisé le déphasage pour une paroi Point de Bloch ainsi que pour une paroi transverse sous divers angles de projection qui nous a confirmé la nature de notre paroi expérimentale. (c) Une analyse moins contraignante que la précédente permet de travailler avec une relative dynamique en conservant la composante électrostatique dans la phase. Ici 2 états d'aimantation opposés sont facilement détectables dans un nanofil au niveau d'une modulation de diamètre. L'intégration de cette composante électrostatique dans les modèles nous permet de déterminer le type de contraste que nous devons rechercher pour isoler une paroi BPW. (d) Si nous sommes capables de positionner les parois dans les modulations, ceci n'est pas nécessairement reproductible et surtout, les parois identifiées étaient toutes dans un état TW. Encore plus déroutant est la transition d'une structure de paroi durant le déplacement. Ceci semble être lié à une composante perpendiculaire à l'axe du fil du champ magnétique appliqué, qui tend à aligner le cœur de la paroi TW avec l'axe optique du microscope

L'intérêt pour les nanofils cylindriques est apparu avec la démocratisation des méthodes d'élaboration par voie chimique dans des matrices poreuses¹⁵³. De nombreux travaux sont donc venus grossir les connaissances expérimentales⁹² sur les parois (cf. Fig.I.18(a-b)) dans ces éléments¹²¹ notamment avec l'ajout de variations dans la section ou dans la chimie des fils dans leur longueur^{147,149,MA17d}. La preuve expérimentale de la présence de parois à point de Bloch¹⁰¹ et leur grande stabilité nous a amené à les observer plus précisément en utilisant l'Holographie électronique afin d'en observer la structure magnétique. Nous avons bien réussi à isoler (cf. Fig.I.18(c)) puis déplacer ces parois dans des fils mais nous n'avons par contre jamais retrouvé la signature de la présence d'une paroi à point de Bloch (BPW)¹⁷. Néanmoins nos études ont permis d'apporter une méthodologie claire pour l'observation de tels objets ainsi que de mettre en lumière l'importance de l'histoire magnétique pour l'apparition de tels éléments dans nos systèmes à modulation de diamètre (cf. Fig.I.18(d)).

Les parois magnétiques semblent avoir trouvé un contenant encore plus prometteur avec l'émergence des nanotubes magnétiques.

iii Nanotubes

L'apparition du placage chimique (Electroless Plating) dans les méthodes de dépôt à travers une membrane¹⁵² a permis de mettre en œuvre de nouveaux systèmes : les nanotubes magnétiques. Ceux-ci offrent des promesses encore plus intéressantes dans la mobilité des parois et même la génération d'ondes de spins pour la magnonique¹¹⁵. Il y a pour l'instant une littérature limitée pour de tels systèmes et surtout une zoologie encore plus vaste de configurations et donc de parois magnétiques (cf. Fig. I.19(G)) dans le cadre encore général du micromagnétisme tri-dimensionnel^{108,159}. Les premières études, menées par microscopie STXM ont montré une aimantation azimuthale dans des tubes de 300 nm de diamètre (CoNiB, épaisseur de paroi de 30 nm)^{157,158}. Nous voulions initialement déterminer la structure Bloch ou Néel des parois (l'aimantation azimuthale n'étant a priori pas favorable pour la microscopie électronique - cf. Fig. I.19(D)) mais nous avons très rapidement observé une configuration très différente, semblant plus basée sur une structure à aimantation axiale. Il faut noter que les tubes observés ont vieilli (1 an) entre les 2 analyses STXM et TEM, ce qui pourrait expliquer un changement drastique de la configuration magnétique. Néanmoins, nous nous sommes très rapidement heurtés au besoin de simulations micromagnétiques qui sont actuellement en cours.

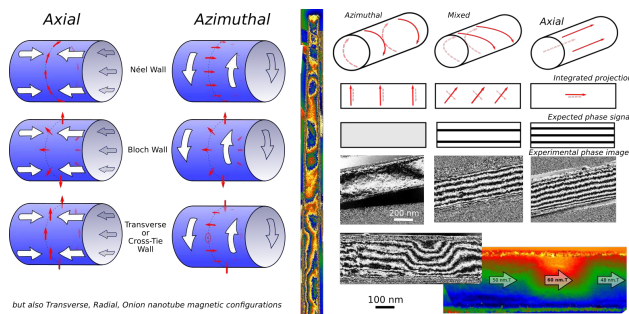


FIGURE I.19 – Nanotubes Magnétiques. (G) Différentes configurations possibles pour l'aimantation dans les nanotubes et leurs parois. Les parois mixtes peuvent être de nature très différentes suivant les paramètres du tube. (C) Image composite d'une longueur de 5 μm d'un nanotube en holographie (mélange des composantes magnétiques et électrique). (D) Evaluation de la projection de l'induction pour l'holographie pour différentes configuration d'aimantation uniforme, d'azimutale à axiale, et comparaison à différentes zones trouvées sur un même tube. Il ne semble pas y avoir de parois dans ces tubes mais plutôt des variations dans l'angle azimuthal de l'aimantation induisant une variation dans l'induction intégrée mesurée.

Comme nous l'avons aperçu au cours de ces différentes études, la projection inhérente aux expériences de microscopie électronique pose problème dans l'étude qualitative des objets. Et elle engendre naturellement des problèmes pour l'extraction de données quantitatives. Nous avons mis au point une analyse tri-dimensionnelle basée sur la symétrie circulaire apportée par ces structures 1D.

iv La tomographie de champs vectoriel (VFET)

La tomographie est la technique de reconstruction en 3D d'un champ à partir de projections multiples. Si dans le cas d'un champ scalaire la tomographie nécessite déjà l'acquisition d'une série d'images (*i.e.* projections) à différentes orientations (*i.e.* tilt) de l'échantillon, dans le cas d'un champ vectoriel il devient nécessaire de multiplier les séries de tilt et d'utiliser les équations de Maxwell pour remonter à la définition tridimensionnelle des composantes de celui-ci. Nous avons proposé avec Charudatta Phatak qu'il était également possible d'utiliser des critères de symétrie pour reconstruire de manière plus directe (mais certes de manière plus restrictive) ce champ 3D. Ainsi dans le cas d'une symétrie cylindrique, comme par exemple le champ magnétique dans un nanofil ou le

champ électrique autour d'une pointe en cours d'émission, l'espace 3D peut être accessible à partir d'une simple projection. L'idée sous-jacente, utilisée dans d'autres méthodes tomographiques, est qu'il est possible d'utiliser l'information située autour de l'objet dans la projection pour la déconvoluer de l'information au cœur de l'objet là où une intégration sur le trajet des électrons est réalisée (transformée d'Abel)¹⁵.

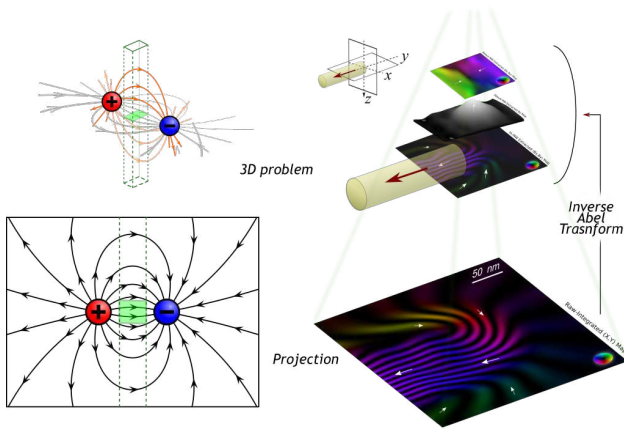


FIGURE I.20 – (G) Principe de la projection d'un champ à symétrie cylindrique avec le cas de 2 charges isolées. L'information qui est intégrée au cours du trajet des électrons peut être décorrélée a posteriori en utilisant l'information contenue dans l'image autour de l'axe de symétrie et en utilisant la transformation inverse d'Abel. (D) Exemple d'un jeu d'images reconstruites dans l'espace pour un nanofil de Nickel.

Si cette technique ne permet qu'une reconstruction parcellaire de l'espace 3D elle est avant tout très intéressante pour obtenir une information quantitative beaucoup plus précise en terme de quantification de la grandeur physique mesurée. Cette méthode est par exemple utilisable pour définir avec précision le champ rayonné à l'apex d'une pointe MFM, ou effectuer une expérience tomographique *in situ* à peu de frais. Je voudrais finir cette partie sur le magnétisme en introduisant 2 études qui introduiront le chapitre suivant.

d In operando et nouvelles sensibilités

J'ai tenté de donner un aperçu exhaustif de mes contributions dans l'étude de la dynamique des parois. Je voudrais désormais mettre la lumière sur des études plus exploratoires, qui n'ont pas encore donné de résultats si ce n'est d'avoir permis de mettre en place les outils nécessaires à l'objet de ce manuscrit : l'*interférométrie électronique in operando*.

i La cartographie de l'effet Hall

Cette cartographie a été imaginée par Christophe Gatel et propose une analyse de l'effet Hall en terme de répartition des charges (cf. Fig. I.21(a)), accessible via l'holographie¹¹¹. J'ai proposé l'utilisation du SOI (Silicon On Insulator) pour créer le dispositif : une piste semiconductrice connectée, faiblement dopée, parcourue par un courant, transparente aux électrons et soumise à un champ magnétique. Les pistes et reprises de contact sont directement dessinées dans le Silicium, une couche d'Aluminium permet d'améliorer la connexion via wire-bonding, et les pistes sont affinées en dessous du μm avec le FIB (cf. Fig I.21). Le champ magnétique de la lentille objectif est donc utilisé pour faire naître un déplacement latéral des charges que nous souhaiterions quantifier avec diverses géométries. Le design de ce type d'échantillon fait appel à des étapes de nanofabrication (notamment la gravure réactive profonde réalisée au LAAS pour l'ouverture des fenêtres MET) complexes et difficilement maîtrisables. Les premières expériences nous ont permis d'apprendre la grande complexité du couplage de la microscopie *in situ* aux expériences d'interférométrie, notamment vis à vis des champs de vue accessibles dans une configuration sous champ magnétique élevé (plusieurs centaines de mT nécessaire pour atteindre notre sensibilité limite en holographie).

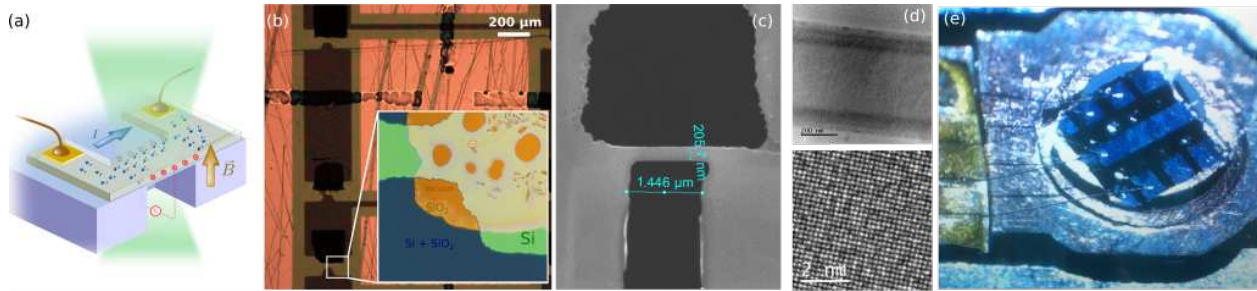


FIGURE I.21 – Montage expérimental pour la mesure de l'effet Hall *in situ*. (a) Schéma de principe (b) Images Optiques des dispositifs lithographiés avec une gravure légèrement trop importante en certains points (c) Amincissement des pistes au FIB. (d) Confirmation au MET de la nature cristalline du pont (e) Connexion de l'échantillon dans le MET.

ii *L'analyse in operando de dispositifs*

Quand nous nous étions intéressé aux têtes d'écriture/lecture de disque dur, nous avons d'abord réalisé des études sous champ pour l'analyse du retournement d'une jonction tunnel modèle de la lecture des données⁹. Puis, une collaboration née avec l'entreprise Seagate sous l'impulsion d'Etienne Snoeck, nous a permis de réaliser la mise en fonctionnement d'une tête d'écriture à l'intérieur du microscope. Les données acquises avec ce dispositif sont un premier résultat fondamental⁶, mais les développements qui en ont découlé - développement d'une nouvelle forme d'holographie, d'un nouveau type de sonde pour la microscopie *in situ* - sont encore plus prometteurs. Et surtout, après ce premier dispositif *réel* mis en fonctionnement dans le MET, nous avons pu construire un projet global de microscopie *in operando* couplé à la l'interférométrie. Nous étudions actuellement des dispositifs simples - condensateurs - pour analyser la répartition des charges aux interfaces. Mais le projet à long terme est une collaboration avec STmicroelectronics^{Gat21} pour analyser des éléments directement extraits des lignes de production et mis en fonctionnement dans le MET.

iii *Conclusions*

J'espère avoir apporté ma pierre dans la compréhension des mécanismes qui régissent le déplacement des parois et des autres objets du micromagnétisme (comme les skyrmions dont je parlerai dans le prochain chapitre). Les différentes méthodologies qu'il a fallu déployer, que ce soit pour l'analyse des nanotubes ou des champs électriques dans les dispositifs de la microélectronique vont m'être utile pour développer une nouvelle forme de l'interférométrie *in operando* que je vais présenter dans le chapitre suivant.

Digression

Ce petit chapitre de liberté scribertine n'est aucunement là pour son apport scientifique, et n'a d'autre vocation que de laisser libre court à l'imagination qui a produit les lignes qui entourent ce moment digressif. Une digression sous cette forme libre avait été proposée dans ma thèse, mais refusée par l'Université qui en avait la charge d'évaluation et de publication[‡].

— " Me dit pas qu'il va la re-tenter, ca serait trop gros."

— " Je vais m'gêner tiens!"

Les lignes qui suivent n'engagent donc que l'auteur et que l'auteur seul et ni le jury proposé en page de garde de ce document, ni les laboratoires sus-nommés, ni l'Université Paul Sabatier à qui ce document est soumis pour évaluation dans l'optique de l'obtention d'un diplôme.

Recherche Scientifique et Toilettes Sèches

Ce fut moins dur et moins long que craint. Mais surtout c'est fini. Fini à temps pour avoir le temps, et avec ce qu'il faut de temps en plus pour en perdre à écrire un peu de vent. J'ai un peu hésité dans le titre que je voulais donner à ce "chapitre". Mais je savais que ca venait surtout d'une construction personnelle générale et en bois en particulier, qui m'a fait prendre conscience de certaines choses avec lesquelles je voudrais dissenter ici bas.

Qu'elles sont d'abord mignonnes, puis passablement rigolotes et finalement condescendantement attendrissantes les réflexions de ceux qui ne savent pas, qui n'ont pas compris et qui ne voudront sûrement jamais comprendre... mais ça y est, c'est fait, on peut dire ce qui est :

On a arrêté de chier dans l'eau potable depuis 5 ans maintenant.

Et s'il y a bien une chose qui semble difficilement admise, et donc raillée, moquée ou vénérée (plus rarement j'admet), c'est de ce "que vous faites" avec les excréments de votre petit microcosme ou dit plus prosaïquement (j'ai en tête cette description volée chez Pierre Carles) : *de la merde que vous mettez sur Terre.*

Je ne pense pas qu'il y ait de bonne ou mauvaise réaction à une telle annonce, moi-même je me sens toujours un peu désemparé dès qu'il faut réagir à une nouvelle coupe de cheveux ou un nouvel agencement d'intérieur, mais quand même. Il me semble que l'affaire ne peut être résumée à de simples questions de standing, de culture ou d'hygiène. Nous sommes tous des scientifiques (je rappelle le titre ici, et je me permet d'inclure dans l'oxymore moult pièces rapportées de mon environnement social qui peuvent être plus littéraires ou moins dogmatiques que les scientifiques voire les 2) et nous avons tous en commun la notion d'importance des faits scientifiques vis à vis des croyances communes. Et donc si l'on peut soliloquer ou débattre faussement de la véracité du réchauffement climatique, de l'absolue sécurité du nucléaire ou de la fusion froide, il devrait être tout aussi bien admis que définitivement, l'eau potable ca n'est pas fait pour faire caca dedans. Ni nettoyer des voitures avec ou encore l'inclure dans un multifeuillage fractal de plastique pour la faire croire plus potable[§].

‡. Néanmoins la version complète de celle-ci est disponible sur le web : <http://aurelien.masseboeuf.free.fr/these.pdf>

§. Tiens, je me rends compte que je paraphrase à tout va : courez voir - en vrai c'est dantesque, sur youtube ca marche aussi - la très belle conférence Incultures 2 de Franck Lepage, qui réhabilite notamment Lepeletier de St Fargeau qui voulait, en opposition à Condorcet, empêcher les riches de s'instruire plus vite que les pauvres, parce que "Former une élite pour assurer l'égalité, c'est bien... Mais si l'élite elle veut pas l'assurer, l'égalité, on fait quoi?"

Notre culture scientifique entachée de latin nous dit donc que l'eau c'est fait pour boire. Et pourtant, j'affirme que si je n'ai jamais rencontré d'hostilité ni de regard outragé, j'ai décelé au moins autant d'incompréhension que d'adhésion après cette transformation somme toute mineure dans notre vie de tous les jours. Et encore, je ne parle pas de ceux à qui l'attribut fait qu'on les reconnaisse aisément car ceux là, ne sont toujours pas mis au courant. Et pourtant... je pense que là est la forme la plus intéressante de la transmission : l'incompréhension au service de l'envie de changement. Instiller par le truchement d'une idée qui semble aberrante, l'idée qu'il y a quelque chose à creuser ; que si d'autres poussent si loin dans le concept étrange, qui semble même abscons, c'est qu'il y a nécessairement sa propre réflexion à mettre en marche ; une inception dans le cheminement traditionnel de sa pensée en quelque sorte. Nous avons ainsi commencé à nous intéresser au bois que l'on utilisait pour le côté sec des toilettes, puis par extension à celui que l'on brûlait pour se chauffer, une fois que ceux que nous appelions en nous-même des intégristes, nous aient poussé à entamer la réflexion sur ce nous utilisons in fine pour jeter nos étrons. Dans de la sciure de bois, oui, mais de quelle origine, de quelle pureté et de quelle empreinte écologique ? Comme s'il n'était pas déjà héroïque de se passer d'eau pour évacuer les choses, il fallait en plus s'intéresser maintenant à la pureté du substitut. Et ensuite ? contrôler jusqu'à l'origine des graines qu'on y adjoindrait dans le potager ou de la matière même du composteur que nous utilisons ? Et pourtant... le même genre de réflexion jusqu'au-boutiste m'avait déjà poussé à arrêter de fumer après que Morgan Spurlock m'avait démontré les nocivités du McDonald's ou à stopper la viande de batterie après avoir découvert l'effroyable vie des endives industrielles.

Et en même temps, il faut quantifier pour s'arroger le statut de scientifique. Et comment quantifier cela ? Qui serait capable de dire par exemple qu'il est plus important, pour notre société inquiète de l'état de sa planète, de ne pas chier dans l'eau potable que de ne pas oublier de brûler son papier hygiénique après un soulagement derrière un sapin doux en montagne ? Tout est histoire de quantification et ma science microscopique ne déroge pas à la règle : une belle image d'accord, mais une image quantifiée c'est tout de même mieux pour lui donner corps et sens au-delà de sa plastique. Et malheureusement je suis souvent proprement incapable de donner à la fois le tenant (le pourquoi de mes toilettes sèches) que l'aboutissant (à l'échelle de combien d'année ce type de pratique devient intéressant pour la grandeur d'une pratique dont je ne connais pas encore l'effet). Car il est peut être illusoire de déféquer dans du bois plutôt que de l'eau si, par exemple, il est plus dangereux pour les Kiribati de faire un Aller-Retour en avion Toulouse-Berlin une fois que d'utiliser des toilettes sèches toute sa vie (ou des toilettes humides une fois... qui sait). Ce problème de quantification est perturbant pour la position que je veux adopter car comment continuer à se soucier de son impact sociétal (ou environnemental) une fois que l'on sait qu'un mot ou qu'une action a de toute façon annihilé toute tentative d'économie future sur son environnement ou sa société locale (et donc globale si l'on se sent pionnier). En d'autres termes, est-il bon d'avoir, voire de se gargariser d'avoir, des toilettes sèches si la simple implication de son activité professionnelle préempte tout le crédit auquel on voudrait prétendre.

Je ne pense pas (mais ne m'en gargarise pas pour autant).

Ce n'est peut être d'ailleurs (et sûrement) pas pour un idéal de construction écologique que nous faisons ça. C'est peut être plus pour se rendre compte de quelque chose. De la simplicité de certaines choses pour ainsi dire. De la même façon qu'un légume, un oeuf, un pain, une pomme, a une saveur bien plus épanouie pour peu que l'on connaisse celui qui l'a fait croître, le savoir que le retraitement est simple et donc facilement implémentable, rend plus heureux que l'implémentation elle-même (mais ne s'auto-réalise pas, faut pas déconner non plus). Et il en serait ainsi de même pour toute forme de réhabilitation de notre propre production involontaire. Ca commence bien sûr avec le bac jaune, mais ca se décline jusque dans la confection de sa lessive, dans l'agencement de son jardin (oui, des toilettes sèches c'est quand même plus praticable avec un jardin, mais sans démonstrateur on n'irait pas loin de toutes façons), l'aménagement de son espace et de son mode de vie. C'est peut

être là qu'il faudrait commencer la quantification : quels actes, quelles modifications ménagères entrent en ligne de compte pour la préservation de son apport non voulu à la bio-masse, là encore je parle de bio-masse sociétale et environnementale. Dans la construction de cette démarche, je parle de se rapprocher de choses simples, préhensibles, explicables, quantifiables... une démarche somme toute assez scientifique.

Quand je repense à mon environnement et surtout à mon besoin de nommer, me vient une mise en abyme de la digression : une digression elle même digressive. Une question de sémantique. Et j'ai oublié d'en parler à Thomas l'autre jour, quand il a été aussi incapable que moi de trouver le dérivatif de propriété... Car il me manque à coup sûr un mot pour revenir sur mon idée initiale de confrontation de mon mode de vie choisi à la norme définie dans mon activité professionnelle. Nous avons assorti le Baleinié[¶] et je manque actuellement de bayardises et de galetteries pour y définir celui sur lequel je n'arrive pas à poser ne serait-ce qu'un embryon d'assonance. Je m'en vais donc le décrire avec d'autres mots : ce mot désignerait l'action consistant à se rassurer de sa propre intégrité, la sachant mise à mal, en accusant le plus probe sur le sujet, d'être faillible. Sous cet attribut, il suffirait d'accuser l'indéfectible pour une unique et ponctuelle défaillance dans le but de protéger sa propre conscience, sa propre intégrité et son confort intellectuel. J'ai tenté des mots comme *pérorette* ou *soliquette* sans en être satisfait. Je suis donc à la recherche du terme pour qualifier ceux (ou l'action de ceux) qui pour se rassurer de ne produire que dans de l'eau potable tous les jours m'accusent de faire popo dans leur verre d'eau de temps à autre.

Ma question est donc : en tant que scientifique un tant soit peu au fait partiel (surtout partiel) des enjeux, des abus et des limites de mon activité et de mon environnement, dois-je et devrais-je agir à la hauteur de mon investissement personnel pour une prise en compte si ce n'est qu'une seule réduction du problème. Suis-je sain d'esprit en remettant la même paire de gants en latex durant toute une semaine pour une expérience de montage en Ultra Vide (qui honnit la graisse de mes doigts) quand je suis obligé pour des raisons "scientifiques" d'en reprendre une nouvelle paire après chaque arrêt pipi en salle blanche ? Est-il intéressant de venir à vélo au travail si c'est pour consommer en électricité l'équivalent de 20 trajets par jour pour une simple pompe à vide ? Est-il seulement même illusoire de préférer débourrer dans de la sciure de bois quand notre outil de travail peut avoir consommé par jour l'équivalent en eau potable de 100 personnes pendant plus d'un mois ? Je n'apporterai pas de réponse ici mais une extrême perplexité. Mon envie personnelle de réduction des coûts énergétiques, d'exemplarité pour mes enfants et mes collègues se fait battre en brèche aussi facilement par un constat quantifié... Un peu comme si l'on avait choisi le cheval pour ne pas utiliser le pétrole avant de se rendre compte de l'extrême saveur de sa viande ou de la complexité de son unicité de production hormonale fécondatrice^{||}. Je m'arrête là ? Que nenni ! (et le cheval n'hennit !)

Si j'ai appris une chose durant cette partie de vie où j'ai été vu et appréhendé comme un chercheur (et encore, je pérore souvent sur mon statut privilégié de "jeune" n'ayant pas d'angoisse à dire merde ou à interrompre les grands) c'est que pourvu que le verbe soit haut, le discours est écouté si jamais il n'était pas entendu. Si la chose, l'objet ou l'idée est amorcée en force, au mépris des convenances ou des hiérarchies, elle reste, au delà de sa "violence"... justement amorcée. A charge alors de trouver la forme dans le fond pour que celle ou celui-ci puisse passer au moins par bribes. C'est dans le théâtre de rue que j'ai vu les meilleurs exemples d'inception dans la compréhension de son propre espace, de son environnement, de son implication dans le collectif, de réflexions non atten-

¶. Livre de recueil de nouvelles entrées possible du dictionnaire où la *Vaculette* définirait alors une in-jonction entraînant l'impossibilité absolue de rebondir. Une assertion sans possibilité de réponse lors d'une discussion ; en général accomplie avec des phrases démarrant par la préposition "Et ben moi, un jour, j'ai..."

||. En toute rigueur, un amoureux indéfectible de la *plus noble conquête humaine* ne devrait même pas consommer de fromage impliquant la gonadotrophine chorionique équine ou alors manger directement un tartare à même la bête.

dues et surtout fédératrices. Et c'est sous cette forme que j'ai vu le meilleur de mes coreligionnaires dans la vulgarisation de concepts, depuis des étudiants blasés jusqu'à un public circonspect bientôt acquis. Aussi je ne perds pas l'envie de faire de cette expérience une nouvelle façon de transmettre les choses. **

S'il est illusoire de penser (et quand bien même, sous quel système quantifié) qu'il sera possible un jour de mettre à l'amende celui qui a coulé un bronze dans une bouteille d'eau plutôt que celui qui a choisi la voie de bus pour son trajet à vélo quotidien car on y entend mieux les oiseaux (et je le cite car j'en suis pour un peu plus d'un kilo-euro cumulé à l'heure actuelle), au moins puis-je penser qu'il y aura toujours des fous, et des cons pour les suivre, et des sages pour ne rien faire.

Mode d'emploi :

1- Ces toilettes n'utilisent pas d'eau

nous, on préfère la boire

ou la mettre dans notre pastis plutôt que dans notre cacca



2- Faites comme d'habitude ...



... assis surtout ...

et pas trop longtemps quand même

y en a peut être qui attendent

vous n'êtes pas filmés, ni observés, mais vous pourriez raconter cette expérience à vos 2'amis

3- Recouvrez de sciure et baissez la lunette !

*... un petit coup de pshiiit dessus en plus (H₂O + huiles ess.)
peut vous aider à vous sentir mieux en sortant*

<<

- Mais est-ce que ça fait trembler le MEDEF ?
(...) est-ce que ça change les rapports sociaux
ce type de pratique ?
(...)

- Ça change plein de choses en fait...
... Tu t'occupe de ta merde ...
... Tous les matins t'as changé qqch
de fondamental dans ta vie ...

Ca devient qqch qui fait partie de ton quotidien
que tu assumes ; c'est pas les autres qui vont
s'en occuper, c'est toi...

C'est la base d'un truc qui peut changer plein
de choses derrière ; tu t'aperçois que t'as changé
qqch de fondamental dans ta vie...

Moi dans mes chiottes je suis heureux.

>>

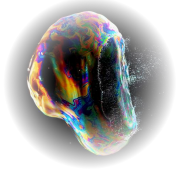


le bâtiment européen a enfin adapté la norme des toilettes
Normaliser la contenance des cuves de WC dans l'Union européenne
Après 5 ans de négociations, le Conseil a trouvé une solution qui sera
dans un rapport de 122 pages. Ce sera 5 fois plus pour l'écologie dans les
toilettes et 5 fois plus de déchets.

lesobservateurs.ch

on utilisera tout ça pour vous proposer bientôt des tomates, des framboises, mais surtout pas de l'eau dans votre whisky !!

** Avant que l'on ne m'accuse de plagiat, j'assume d'avoir pillé nombre de jeux de mots de Pierre Desproges tout au long de ce manuscrit et surtout au cours de ce chapitre. Voyons-y s'il vous plaît un hommage plutôt qu'un plagiat.



Chapitre Deux

Imagerie Magnétique in operando à haute fréquence

Sommaire

II.1	Dispositifs MRAM	33
II.2	Micro et Nanomagnetisme	34
a	Structures 1D	34
b	Skyrmions	34
II.3	Spin Orbital Torque et Microscopie Électronique	35
II.4	Besoins en développement instrumentaux	36
II.5	Conclusion	38

Nous avons exploré, dans le chapitre précédent, les capacités de la microscopie électronique à résoudre la dynamique de la matière et des dispositifs, et plus particulièrement les gradients de champ magnétique qui apparaissent au niveau des objets comme les parois de domaine. A partir de ces données et connaissances je propose de mettre en place des études originales, basées sur l'expertise de différentes équipes de recherche avec qui je compte collaborer.

II.1 Dispositifs MRAM

Les dispositifs à mémoire magnétique (en lieu et place des mémoires à charge électrique ou à changement de phase) sont actuellement au cœur des enjeux de la micro-électronique et sont entrés en 2018 en phase de production de masse¹²⁷. Ceux-ci vont permettre un stockage de l'information ou l'intégration de systèmes logiques de manière plus fiable et à moindre coût de fonctionnement. Les études sur l'implémentation de macro-spin (comme bits de donnée) dans des structures de plus en plus petites est actuellement l'un des enjeux principaux pour le succès d'une telle intégration^{86,140}. Les études que nous commençons à mener sur des dispositifs standard de la micro-électronique (cf. Fig.II.1(C)) où le stockage de l'information est réalisé par des charges électriques (eRAM) ou par une modification de structures (PCM) me permettent d'envisager une méthodologie similaire pour la détection de macro-spins de dimensions réduites dans des dispositifs lors de leur activation. En effet s'il est possible actuellement de réaliser des dispositifs où les courants polarisés peuvent retourner l'aimantation des structures magnétiques (STT - spin transfert torque) pour modifier l'information¹¹⁷, il demeure un manque de connaissance sur le micromagnétisme effectif des structures, d'autant plus quand la réduction de leurs dimensions est un pré-requis à leur intégration. Ce type d'information est crucial pour l'intégrité de la donnée stockée (interaction avec le dispositif voisin, stabilité consistante du système seul) et l'apport de la microscopie électronique est indispensable pour la combinaison unique de résolution spatiale et de sensibilité magnétique qu'elle offre. Le développement de points mémoires ponctuels (dans les limites actuelles de la micro-électronique < 10 nm)¹⁴¹, intégrés dans un dispositif, est une donnée indispensable que le MET semble actuellement le seul capable d'imager. Le micromagnétisme de ces points mémoire (est-il stable dans son environnement, comment interagit-il avec ses voisins, quelle est sa dynamique de retournement) est une donnée indispensable pour pouvoir définitivement intégrer ce type de mémoires dans les futurs dispositifs. Je veux donc étudier leur comportement à l'aide de l'holographie électronique in operando en étudiant la stabilité et la configuration de ces macro-spin dans leur environnement (cf. Fig.II.1(D)) durant leur fonctionnement d'abord avec l'application d'un champ magnétique mais surtout sous l'action d'un courant polarisé. Des développements sur l'intégration des couches à aimantation perpendiculaire nanostructurées¹⁶³ pour le stockage à haute densité de points mémoires sont actuellement en cours à Spintec et je veux me rapprocher de ces développements pour offrir une microscopie in operando sur de tels dispositifs.

De plus, un des points cruciaux de ce type de dispositifs est l'écriture à moindre coût énergétique. Si l'assistance thermique est actuellement privilégiée¹⁰³, c'est l'utilisation possible d'une excitation radio fréquence qui m'intéresse ici en étant capable d'injecter de tels signaux sur des échantillons TEM. Cette finalité est d'autant plus intéressante pour une application dans l'étude des oscillateurs RF à transfert de spin¹²⁵. Ces derniers points vont notamment nécessiter la finalisation du développement instrumental proposé dans le premier chapitre.

Du point de vue du développement de la microscopie, l'idée de pouvoir déterminer avec précision la limite de détection magnétique de cet outil, en profitant de très nombreux systèmes magnétiques différents actuellement en développement autour des points mémoires, est également un enjeu crucial dans le développement de l'holographie électronique à l'échelle internationale. De tels systèmes pourraient permettre de définir les standards magnétiques en termes de sensibilité et de définir de nouvelles perspectives pour le futur de cette technique. Enfin, la confrontation de l'imagerie magnétique par MET à des matériaux réels (i.e. adaptés aux standards de la micro-électronique) et notamment la taille critique des contacts pour l'injection de courants polarisés via les métaux standards utilisés - Platine et Tantale - a priori trop lourds (opaques) pour les ondes électroniques sera un enjeu majeur et un domaine d'étude à part entière pour le futur de la microscopie in-operando.

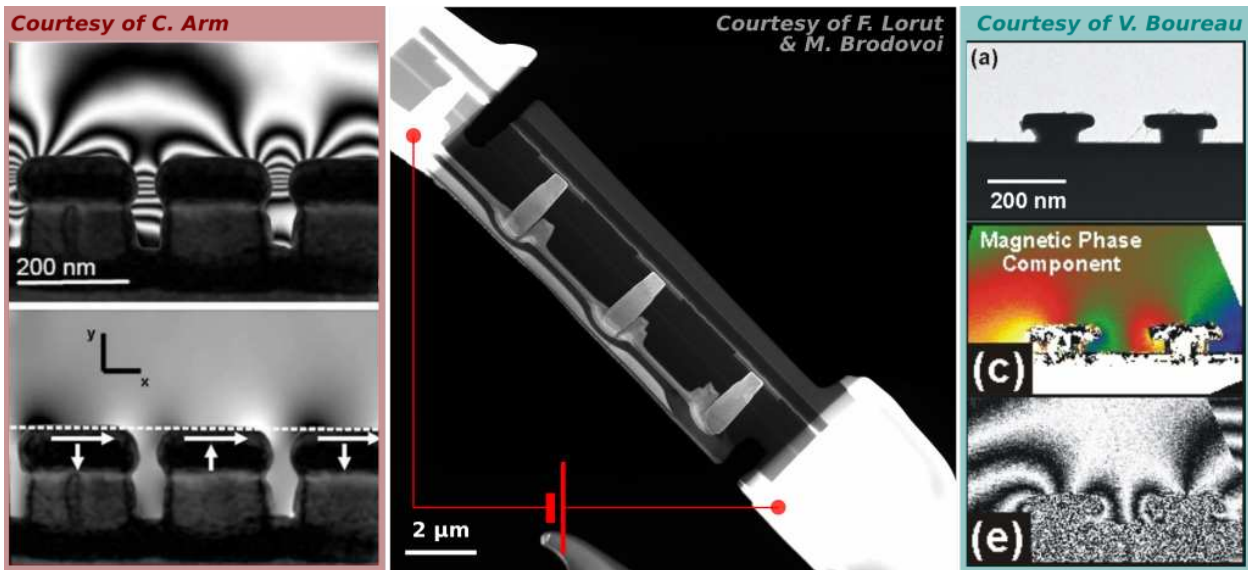


FIGURE II.1 – (G) Mesures effectuées à Spintec sur des plots où l'aimantation (et donc les champs rayonné) adopte 4 configurations distinctes grâce à un système bicouche¹³⁴. (C) Préparation FIB d'une Capacité MIM (Métal-Isolant-Métal) connectée pour l'acuation in situ dans le cadre du projet IODA^{Gat21}. (D) Holographie sur un système MRAM ponctuel qui démontre l'absence de couplage entre 2 points mémoire.

II.2 Micro et Nanomagnetisme

Si j'ai prévu de transformer l'essai de l'in operando vers les dispositifs à mémoire ou à logique magnétique, j'ai aussi le projet de continuer dans une approche plus amont en étudiant les nouveaux systèmes magnétiques à fort potentiel d'intégration. Même si je me garderai de faire une prédiction sur le prochain élément qui intégrera les dispositifs (MRAM ou autre), j'ai néanmoins choisi de m'investir sur 2 systèmes sur lesquels je travaille déjà actuellement. Le MET permet une sensibilité en volume sur les parois de domaine dans les nano-objets ce qui est indispensable à leur validation expérimentale ; mais son principal atout demeure sa relative adaptabilité aux contraintes in situ et sa facilité d'accès pour les études en champ magnétique couplée aux études structurales.

a Structures 1D

J'en ai parlé au chapitre précédent, et j'espère continuer dans cette voie, notamment en terminant les dispositifs dans le MET que nous avons commencé à élaborer durant la première partie de la thèse de Mia Andersen^{And20} (mais aussi pour les dispositifs à base de nanotubes avec le Post-doc d'Abraao Cerfas^{Cer18}). Nous avons pris un retard non négligeable vis à vis d'autres techniques de caractérisation¹⁷³, et même vis à vis d'autres équipes de microscopie¹²⁰, et il devient urgent que ce type de systèmes magnétiques (nanofils cylindriques) connectés dans le MET soit une réalité au CNRS.

En parallèle je souhaite poursuivre les études sur les nanotubes magnétiques, et proposer une étude la plus exhaustive possible des parois en jeu et prolonger vers l'injection de courant, notamment dans des systèmes coeur-coquille¹⁴⁶.

b Skyrmions

Un objet à la rencontre entre le micromagnétisme et la spintronique dont je n'ai pas encore parlé, et qui va me permettre de faire la transition entre cette section et la suivante est le skyrmion¹³⁵. Ces structures¹⁷⁵ qui ont été isolées expérimentalement récemment dans les champs des matériaux magnétiques apparaissent dans certaines configurations de matière (structures chirales ou asymé-

triques) et demeurent *a priori* indépendantes de celle-ci ce qui permet d'envisager des mobilités bien plus grandes que pour les parois qui ont une forte tendance à se piéger sur les défauts de leur contenant. Il y a de nombreuses façon d'isoler ces structures, depuis les films ultra minces⁹⁵ jusqu'aux alliages magnétiques chiraux^{124,178} en passant par les empilements¹³³ ou les nanostructures^{145,179}. Il existe également de très nombreuses structures que l'on dénomme par ce système devenu très à la mode^{MA17a,MA17b}. La principale différence vient à mon sens de la structure de la paroi séparant le cœur du skyrmion de la matrice : Néel pour un skyrmion *de surface* et Bloch pour un skyrmion *de volume*. Il existe bien sûr une bibliographie déjà très très fournie sur l'imagerie de skyrmions par holographie électronique^{124,137,143,155,161}.

Nous avons pris beaucoup de retard dans la mise en place des outils pour de telles études, ne ré-

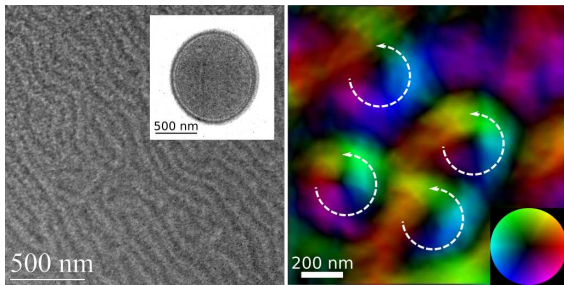


FIGURE II.2 – Tentatives d'observation de skyrmions lors de collaborations. (G) Structure en domaines Up-Down dans un alliage multicouche de CoNi. Nous avons lithographié des plots de $1 \mu\text{m}$ de diamètre pour isoler des structures du type skyrmion (solitons) en suivant des cycle de désaimantation précis. L'imagerie dans les plots n'a malheureusement rien donné (coll. T. Hauet, Nancy). (D) Imagerie par reconstruction focale d'une probable phase skyrmion dans le FeGe (coll. C. Bouard & P. Warin, INAC, Grenoble).

pondant que ponctuellement à des besoins d'imagerie (cf. Fig. II.2). J'ambitionne de mettre cette activité au cœur de mon projet de recherche notamment par l'apport de la microscopie in-situ. Les travaux récents sur la nucléation et le déplacement de skyrmions par courant¹¹⁶ ont démontré la nécessité d'avoir un système complémentaire aux expérience de champ proche in situ en offrant la même versatilité de mesure avec une sensibilité en volume et pouvant apporter une résolution temporelle plus intéressante.

Au regard de la méthode, l'imagerie MET requiert un couplage à la simulation micromagnétique adapté à sa sensibilité que nous avons désormais établi. Je souhaite néanmoins développer une imagerie magnétique univoque, basée sur le micromagnétisme en jeu mais dont la compréhension des images ou la validité de la mesure ne serait pas dépendante de la validation par la simulation. L'idée par exemple d'une mesure de l'échange par la mesure de largeur de paroi dans un fil couplée à la mesure du M_S , deux mesures accessibles dans une même image d'holographie, pourrait apporter l'argument méthodologique de séparation de l'imagerie MET du modèle micromagnétique (qui restera une validation à faire). C'est à mon sens une fois ce genre de méthodologie réalisée qu'il sera possible de coupler sereinement le micromagnétisme à la structure atomique par une une mesure MET, qui demeure, elle, totalement validée par un cliché Haute Résolution.

II.3 Spin Orbital Torque et Microscopie Électronique

L'interaction à *distance* de courants polarisés en spin avec les matériaux magnétiques via le couplage spin-orbite semble être un des aspects fondamentaux pour l'avenir des dispositifs à mémoire ou à logique magnétique. C'est notamment cette interaction qui est à l'origine de la brisure de symétrie donnant naissance aux phases skyrmions vues ci-dessus. De nombreux effets fondamentaux et porteurs de promesses applicatives sont ainsi au cœur de la recherche en spintronique.

Nous avons tenté avec S. Pizzini de comprendre le micromagnétisme en jeu au cœur de l'interaction Dzyaloshinskii-Morya via des études préliminaires sur l'empilement Pt//Co//AlO_x et notamment tenté de déterminer le type et la chiralité des parois apparaissant dans ces films ultra minces. Malheureusement nous n'avons pu réussir à observer les parois malgré un couplage entre les mesures MOKE et TEM. Des travaux sur ce sujet, du groupe de microscopie de Glasgow, ont depuis été

publiés⁹¹ en citant une approche d'analyse des contrastes de Fresnel que j'avais utilisée durant ma thèse (et que j'aurais utilisé ici si j'avais pu voir ces parois). Les limites de sensibilité aperçues dans cette étude semblent actuellement se reproduire avec des études lancées (coll. A. Mougin) sur un autre système, le ferrimagnétisme chiral, qui a pourtant déjà été imagé par microscopie électronique¹⁶⁰. Il me faudra pousser plus loin ces analyses et surtout tenter de déterminer ce qui peut limiter cette détection sur le microscope I2TEM du CEMES. L'interaction scientifique, comme celle abordée pour l'étude des skyrmions m'a démontré un point important : nous avons besoin de mettre en place une collaboration étroite entre le design, la physique et des caractérisations complémentaires sur de tels systèmes. Nous devons donc rapprocher la physique des matériaux de la microscopie dans des études dédiées.

A titre d'exemple, le couple à transfert de spin (Spin Transfert Torque - action d'un courant cir-

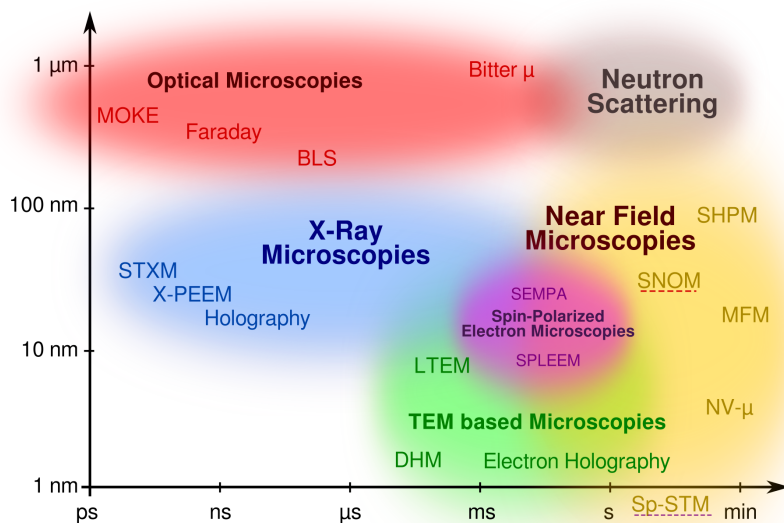


FIGURE II.3 – Diagramme de résolution spatio-temporelle de diverses techniques d'imagerie magnétique construit à partir des données récupérées dans diverses revues (voir aussi la dernière revue en date de Y. Zhu¹⁸⁰). Les limites sont volontairement floues, et certaines techniques ne sont pas détaillées. Une mise à jour de ce diagramme est en cours de réalisation.

culant dans un métal ferromagnétique sur une paroi de domaine) n'est pas encore accessible dans un MET de manière standard (il n'y a à mon sens que 2 travaux convaincants et sans suite qui peuvent s'en réclamer^{123,142}) et nécessite des développements instrumentaux ainsi que des systèmes ad-hoc. Nous sommes toujours à la recherche d'un démonstrateur pour la microscopie. Je pense néanmoins qu'il faut d'ores et déjà voir plus loin et se concentrer sur l'observation en MET de phénomènes basés sur le couplage spin-orbite (i.e. courant de charges induisant un courant de spins). Des effets comme le renversement de l'aimantation induit par un courant de spin⁹⁰ ou l'effet Hall de skyrmion¹²² sont des phénomènes que j'aimerais pouvoir analyser à l'aune de la sensibilité du MET.

II.4 Besoins en développement instrumentaux

Il existe un point commun à ces divers développements : leur dimension intrinsèquement dynamique. Un exemple que j'aime présenter est la vitesse d'une paroi que l'on voudrait imager durant son déplacement et dont l'on peut faire une approximation haute de l'ordre du km/s ^{MA16c}. Les techniques généralement employées pour mesurer ces vitesses font appel à des pulses courts de champ (ou de courant) pour limiter ce déplacement, et l'on peut, en première approche déterminer la résolution temporelle nécessaire vis à vis de la résolution spatiale requise (et donc du champ de vue disponible). Une paroi étant un objet de l'ordre de 10 nm (limite haute là encore), il nous faudra une résolution d'au minimum 1 nm et donc un champ de vue maximum de 10 μm semble une taille maximum pour préserver cette résolution adéquate (considérant une détection sur 10 000 pixels) pour sonder la structure de la paroi durant son déplacement. Il nous faut donc **une résolution temporelle**

de l'ordre de 10 ns pour espérer détecter un tel objet. Un rapide (et biaisé, j'en conviens) tour des techniques d'imagerie magnétique disponibles (cf. Fig.II.3) nous montre qu'il n'existe à l'heure actuelle pas de technique réunissant les résolutions temporelle et spatiale nécessaires. Je note ici qu'un élément indispensable manque à une telle description : la sensibilité de la technique. Derrière cette *sensibilité* se dissimule la quantité de matière nécessaire ou la composante sondée (aimantation, induction,...) mais il faut également y ajouter la contrainte expérimentale, la modularité et répétabilité de la mesure...

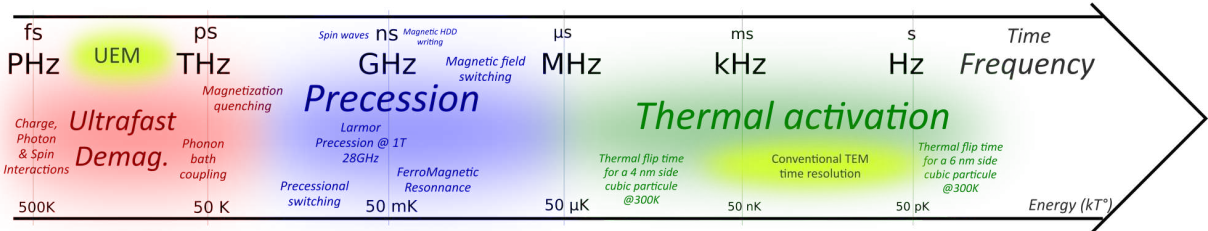


FIGURE II.4 – Echelle temporelle des différents processus magnétiques. La microscopie électronique conventionnelle et ultra-rapide (UEM) sont positionnées sur ce diagramme

La microscopie peut actuellement couvrir, dans le domaine temporel, le magnétisme activé thermiquement avec la microscopie conventionnelle ou le domaine de la désaimantation ultra-rapide via les méthodes UEM⁸⁷. Le domaine précessionnel (cf. Fig.II.4), s'il est couvert par d'autres techniques d'imagerie ne lui est par contre pas accessible. C'est à partir de cette considération que j'ai construit le projet MILF^{Mas21} : Magnetic Imaging at Low dimensions and high Frequencies (financé au titre de l'AAP 2018). Le but est de développer un système de pompe-sonde entièrement électro-magnétique (sans utiliser d'impulsions lasers comme il l'est fait dans les techniques UEM) à la manière de ce qui avait été proposé originellement par Bostanjoglo⁹⁴. Ce projet nécessitera de travailler sur différentes parties de la microscopie déjà abordées le long de ce manuscrit :

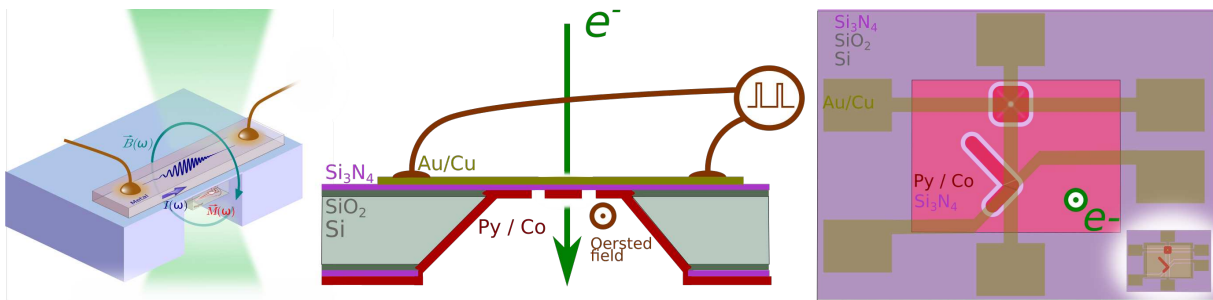


FIGURE II.5 – (G) Schéma de principe des échantillons pour le projet MILF. (C) Vue en coupe des échantillons MET proposés dans le projet où la membrane sert de support et de séparateur entre les lignes de courant. (D) Vue de dessus des échantillons montrant la superposition des lignes de courant et des conteneurs de paroi ou de vortex magnétiques. L'insert montre une autre configuration pour préserver l'évacuation des charges du faisceau électronique par une couverture métallique maximum.

- La microscopie in situ est la porte d'entrée à ce projet. Néanmoins nous devons être capable d'injecter des signaux dans la gamme du GHz de façon propre sur l'échantillon, à l'extrémité de la canne MET.
- Il faudra également des échantillons modèles pour valider la technique. Nous avons choisi des conteneurs simples en Permalloy ou Cobalt associés à des lignes de courant. Les membranes de nitrure nous serviront à la fois de support et d'isolant électrique (cf. Fig.II.5).

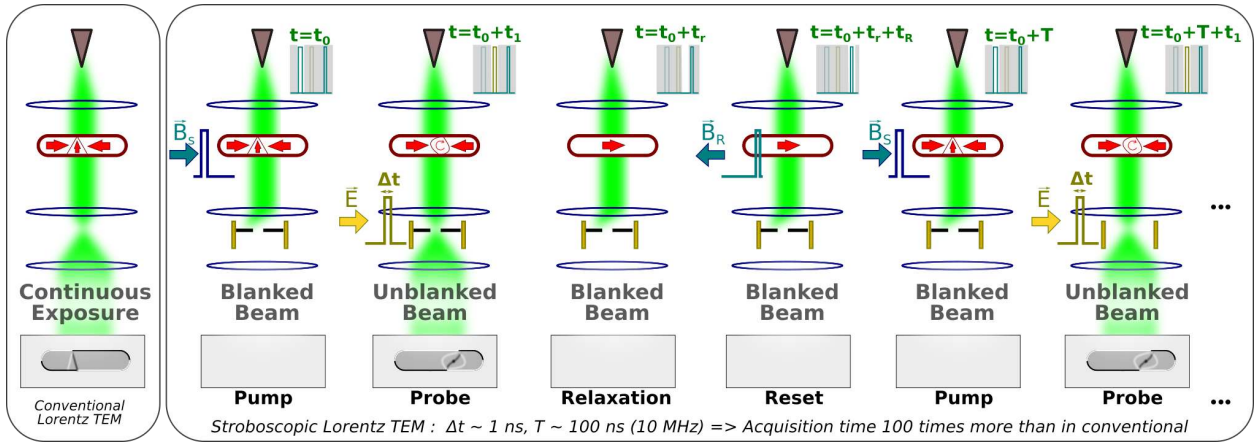


FIGURE II.6 – Principe d’une mesure stroboscopique dans le TEM comparée à une mesure standard (G). L’échantillon est tout d’abord excité (pompe) alors que le faisceau est bloqué. A la suite d’un délai choisi le faisceau est libéré pour aller frapper le détecteur durant une courte période (sonde), du même ordre de grandeur que la pompe. Enfin, après un temps de relaxation, un troisième signal est amené sur l’échantillon pour rétablir l’état initial avec de lancer un nouveau cycle.

- Enfin, la partie la plus risquée sera de réaliser un *chopping* du faisceau d’électron pour synchroniser l’excitation (pompe) à un éclairage rapide de l’échantillon (la sonde). Ceci sera réalisé à l’aide d’un *blanker* haute fréquence situé après l’échantillon nécessitant le développement de l’électronique et du système optique adéquat (cf. Fig.II.6).

Le point bloquant de ce développement est notre capacité à produire un *blanking* ultra-rapide du faisceau électronique. Celui-ci sera effectué par des plaques défectrices soumises à des pulses de champ électrique, le tout positionné dans un espace de la colonne du MET où il est possible d’avoir à la fois suffisamment d’espace pour que la déflexion soit suffisante (sans nécessiter de champs électrique trop important) et à la fois une zone *ponctuelle* du faisceau (*crossover* - cf. Fig.II.6). Les temps caractéristique que j’aimerais atteindre sont des pulses de l’ordre de la dizaine de ns avec un taux de répétition au MHz. Un point important ici est la nécessité de préserver un rapport cyclique supérieur à 1 % pour ne pas augmenter le temps de pose au delà de 10 s. Il nous faudra néanmoins passer par du design électronique pour arriver à produire des pulses aussi court avec suffisamment de puissance. En tout état de cause, si jamais ce type de développement se révélait inaccessible nous pourrions proposer une résolution temporelle plus faible, basée sur les défectrices existantes avec un taux de répétition inférieur au MHz mais promettant déjà des études très intéressantes pour le magnétisme.

II.5 Conclusion

Ces différents projet me semblent intimement corrélés par leur contributions à différents points de l’intégration du magnétisme dans les dispositifs. Ils sont également corrélés par ce qu’il requiert de compétences, tant au niveau du nanomagnétisme que de la microscopie. C’est pour la réalisation de ceux-ci que je souhaite donc me rapprocher d’une unité dédiée aux dispositifs magnétiques (Spintec) tout en préservant mes liens avec une unité de pointe en microscopie électronique (Cemes) et en intensifiant mes collaborations avec d’autres unités de recherche en pointe sur de tels développements et, comme un fait exprès, en charge de l’évaluation de ce manuscrit.

Conclusions

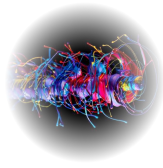
Mon activité de microscopiste s'est centrée autour de 2 grandes thématiques matériau que sont les nano-carbones et le micromagnétisme durant ces 10 dernières années. J'ai pu, grâce cette double compétence, explorer de nombreuses voies tant dans la microscopie électronique que dans la physique expérimentale. J'ai eu l'occasion de former de nombreux étudiants aux rudiments de la recherche et j'en remercie pour cela mon unité d'accueil. J'ai en parallèle de cette activité scientifique pris part à certaines responsabilités administratives au sein de mon laboratoire ainsi que dans l'organisation d'écoles et de conférences. J'ai eu la chance de pouvoir réaliser ma recherche sur des instruments de dernière génération et de mettre en place des dispositifs expérimentaux innovants ou didactiques et j'ai également pu assouvir ma soif d'enseignement à différents niveaux universitaires. Je remercie donc encore une fois tous ceux qui m'ont permis de mener à bien cette recherche.

Cette demande d'Habilitation à Diriger des Recherches revêt un caractère particulier car elle coïncide avec deux changements de direction profonds que je souhaite réaliser dans la foulée de celle-ci : un changement thématique en centrant mon activité sur la dynamique des dispositifs à mémoire magnétique en général et du micromagnétisme en particulier ; un changement d'affectation ensuite pour intégrer un nouveau laboratoire où j'espère apporter mon dynamisme et reconstruire des relations scientifiques solides (en conservant mes attaches scientifiques actuelles) et où je sais pouvoir trouver les compétences humaines, techniques et intellectuelles pour mener à bien le projet que je viens de présenter.

Enfin, j'espère nourrir avec ce document la réflexion qui sera nécessaire à ces divers accomplissements. Plus qu'une évaluation j'espère pouvoir apprendre beaucoup des discussions que ce manuscrit va faire naître.

Et je remercie enfin tout lecteur qui sera arrivé jusque ici.

Clap!



Chapitre Trois

Bibliographie et données de recherche

Sommaire

Articles Publiés dans des revues à Comité de Lecture	41
Thèses, Post-Doc et Stages encadrés	43
Projet (co-)coordonnés	45
Rapports d'expertise	46
Autres références	47

Toutes les références appelées le long du manuscrit sont explicitées dans ce chapitre. Pour m'adapter à la forme d'une Habilitation à Diriger les Recherches, j'ai décidé de les classer en 5 parties :

- Références issues de ma production scientifique
- Références au travail d'étudiant.es que j'ai encadré.es
- Références à des projets coordonnés ou co-coordonnés
- Références à des rapports d'expertise ou notes de synthèse
- Autre références bibliographiques utilisées dans le document

Articles de ma production scientifique

- [1] M. R. Bionta, B. Chalopin, J. P. Champeaux, S. Faure, A. Masseboeuf, P. Moretto-Capelle, and B. Chatel. Laser-induced electron emission from a tungsten nanotip : Identifying above threshold photoemission using energy-resolved laser power dependencies. *Journal of Modern Optics*, 61(10) :833–838, June 2014.
- [2] Mina Bionta, Benoit Chalopin, Marc Delmas, Florent Houdellier, Aurelien Masseboeuf, Julien Mauchain, and Beatrice Chatel. Ultrafast Laser-Induced Field Emission from a Single Carbon Nanotube Based Nanotip. page JW2A.52. OSA, 2015.
- [3] F. Cheynis, A. Masseboeuf, O. Fruchart, N. Rougemaille, J. C Toussaint, R. Belkhou, P. Bayle-Guillemaud, and A. Marty. Controlled Switching of Neel Caps in Flux-Closure Magnetic Dots. *Physical Review Letters*, 102(10) :107201, 2009.
- [4] L. de Knoop, C. Gatel, F. Houdellier, M. Monthieux, A. Masseboeuf, E. Snoeck, and M. J. Hÿtch. Low-noise cold-field emission current obtained between two opposed carbon cone nanotips during in situ transmission electron microscope biasing. *Applied Physics Letters*, 106(26) :263101, June 2015.
- [5] Ludvig de Knoop, Florent Houdellier, Christophe Gatel, Aurélien Masseboeuf, Marc Monthieux, and Martin Hÿtch. Determining the work function of a carbon-cone cold-field emitter by in situ electron holography. *Micron*, 63 :2–8, 2014. **Texte intégral disponible en fin de document.**
- [6] Joshua F. Einsle, Christophe Gatel, Aurélien Masseboeuf, Robin Cours, Muhammad A. Bashir, Mark Gubbins, Robert M. Bowman, and Etienne Snoeck. In situ electron holography of the dynamic magnetic field emanating from a hard-disk drive writer. *Nano Research*, pages 1–9, 2014. **Texte intégral disponible en fin de document.**
- [7] F. Houdellier, L. de Knoop, C. Gatel, A. Masseboeuf, S. Mamishin, Y. Taniguchi, M. Delmas, M. Monthieux, M. J. Hÿtch, and E. Snoeck. Development of TEM and SEM high brightness electron guns using cold-field emission from a carbon nanotip. *Ultramicroscopy*, 151 :107–115, April 2015.
- [8] Florent Houdellier, Aurélien Masseboeuf, Marc Monthieux, and Martin J. Hÿtch. New carbon cone nanotip for use in a highly coherent cold field emission electron microscope. *Carbon*, 50(5) :2037–2044, April 2012. **Texte intégral disponible en fin de document.**
- [9] E. Javon, C. Gatel, A. Masseboeuf, and E. Snoeck. Electron holography study of the local magnetic switching process in magnetic tunnel junctions. In *Journal of Applied Physics*, volume 107, page 09D310, 2010.
- [10] Thomas Jourdan, Aurélien Masseboeuf, Frédéric Lancon, Pascale Bayle-Guillemaud, and Alain Marty. Magnetic bubbles in FePd thin films near saturation. *Journal of Applied Physics*, 106(7) :073913, 2009.
- [11] A. Masseboeuf, O. Fruchart, J. C. Toussaint, E. Kritsikis, L. Buda-Prejbeanu, F. Cheynis, P. Bayle-Guillemaud, and A. Marty. Dimensionality Crossover in Magnetism : From Domain Walls (2D) to Vortices (1D). *Physical Review Letters*, 104(12) :127204, 2010. **Texte intégral disponible en fin de document.**
- [12] Aurélien Masseboeuf. In Situ Characterization Methods in Transmission Electron Microscopy. In Alain Claverie and Mireille Mouis, editors, *Transmission Electron Microscopy in Micro-Nanoelectronics*, pages 199–218. John Wiley & Sons, Inc., 2013.

- [13] Aurélien Masseboeuf, Olivier Fruchart, Fabien Cheynis, Nicolas Rougemaille, Jean-Christophe Toussaint, Alain Marty, and Pascale Bayle-Guillemaud. Micromagnetic study of flux-closure states in Fe dots using quantitative Lorentz microscopy. *Ultramicroscopy*, 115(0) :26–34, 2012.
- [14] Aurélien Masseboeuf, Alain Marty, Pascale Bayle-Guillemaud, Christophe Gatel, and Etienne Snoeck. Quantitative Observation of Magnetic Flux Distribution in New Magnetic Films for Future High Density Recording Media. *Nano Letters*, 9(8) :2803–2806, 2009.
- [15] C. Phatak, L. de Knoop, F. Houdellier, C. Gatel, M. J. Hÿtch, and A. Masseboeuf. Quantitative 3D electromagnetic field determination of 1D nanostructures from single projection. *Ultramicroscopy*, 164 :24–30, May 2016. *Texte intégral disponible en fin de document.*
- [16] Etienne Snoeck, Florent Houdellier, Yoshifumi Taniguchi, Aurelien Masseboeuf, Christophe Gatel, Julien Nicolai, and Martin Hytch. Off-Axial Aberration Correction using a B-COR for Lorentz and HREM Modes. *Microscopy and Microanalysis*, 20(Supplement S3) :932–933, 2014.
- [17] M. Staño, S. Jamet, J. C. Toussaint, S. Bochmann, J. Bachmann, A. Masseboeuf, C. Gatel, and O. Fruchart. Probing domain walls in cylindrical magnetic nanowires with electron holography. *Journal of Physics : Conference Series*, 903(1) :012055, 2017.
- [18] R. Wang, A. Masseboeuf, D. Neumeyer, M. Monthieux, A. Lopez-Bezanilla, and R. Arenal. Doped carbon nanostructure for cold-field emission guns : Structural and EELS studies. In *2016 IEEE Nanotechnology Materials and Devices Conference (NMDC)*, pages 1–2, Toulouse, France, October 2016.
- [19] Rongrong Wang, Raul Arenal, Aurélien Masseboeuf, David Neumeyer, Marc Monthieux, and Alejandro Lopez-Bezanilla. Structural and EELS studies on Doped Carbon Nanostructures for Cold Field Emission. In *Microscopy and Microanalysis*, volume 22, pages 60–61, March 2016.

Articles non cités dans le manuscrit

- [20] M. R. Bionta, B. Chalopin, A. Masseboeuf, and B. Chatel. First results on laser-induced field emission from a CNT-based nanotip. *Ultramicroscopy*, 159(Part 2) :152–155, December 2015.
- [21] Fabien Cheynis, Aurélien Masseboeuf, Olivier Fruchart, Nicolas Rougemaille, Jean-Christophe Toussaint, Rachid Belkhou, Pascale Bayle-Guillemaud, and A. Marty. How many bits may fit in a single magnetic dot ? XMCD-PEEM evidences the switching of Néel caps inside Bloch domain walls. 2009.
- [22] D. Cooper, Armand Béch e, M. den Hertog, Aurelien Masseboeuf, J. L. Rouviere, P. Bayle-Guillemaud, and N. Gambarcoti. Off-Axis Electron Holography for Field Mapping in the Semiconductor Industry. *Microscopy and Microanalysis*, 24(5) :5–8, 2010.
- [23] O. Fruchart, A. Masseboeuf, J. C. Toussaint, and P. Bayle-Guillemaud. Growth and micro-magnetism of self-assembled epitaxial fcc(111) cobalt dots. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 25(49) :496002, 2013.
- [24] Olivier Fruchart, Nicolas Rougemaille, Azzedine Bendounan, Jean-Christophe Toussaint, Rachid Belkhou, Yuan Tian, Hyeonseung Yu, Fabien Cheynis, Aurelien Masseboeuf, Pascale Bayle-Guillemaud, and Alain Marty. Asymmetric Hysteresis of Néel Caps in Flux-Closure Magnetic Dots. *IEEE Transactions on Magnetics*, 46(6) :1552–1555, 2010.

- [25] A Masseboeuf, F. Cheynis, J.-C. Toussaint, O. Fruchart, C. Gatel, A. Marty, and P. Bayle-Guillemaud. Electron Microscopy Investigation of Magnetization Process in Thin Foils and Nanostructures. In *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, volume 1026E, pages 1026–C22–04, Boston, 2008. E. Snoeck, R. Dunin-Borkowski, J. Verbeeck and U. Dahmen.
- [26] A. Masseboeuf, C. Gatel, P. Bayle-Guillemaud, Y. Lamy, and B. Viala. The use of Lorentz microscopy for the determination of magnetic reversal mechanism of exchange-biased Co₃₀Fe₇₀/NiMn bilayer. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 321(19) :3080–3083, 2009.
- [27] A Masseboeuf, C Gatel, A Marty, Jean-Christophe Toussaint, and P Bayle-Guillemaud. Lorentz microscopy mapping during magnetization process of L10 FePd thin films. In *Journal of Physics : Conference Series*, volume 126, page 012055, 2008.
- [28] A. Masseboeuf, C. Gatel, A. Marty, Jean-Christophe Toussaint, and P. Bayle-Guillemaud. Lorentz microscopy mapping during magnetization process of L10 FePd thin films. *Journal of Physics : Conference Series*, 126(1) :012055, 2008.
- [29] Aurélien Masseboeuf, Christophe Gatel, Pascale Bayle-Guillemaud, Alain Marty, and Jean-Christophe Toussaint. Lorentz microscopy mapping for domain wall structure study in L1₀ FePd thin films. *Ultramicroscopy*, 110(1) :20–25, 2009.
- [30] Aurelien Masseboeuf, Thomas Jourdan, Frederic Lancon, Pascale Bayle-Guillemaud, and Alain Marty. Probing magnetic singularities during magnetization process in FePd films. *Applied Physics Letters*, 95(21) :212501–3, 2009.

Encadrement de la recherche

Thèses

- [Kno14] Ludvig De Knoop. *Development of Quantitative In Situ Transmission Electron Microscopy for Nanoindentation and Cold-Field Emission*. PhD thesis, I3EM, CEMES-CNRS (UPR 8011), Université Toulouse 3 Paul Sabatier, February 2014. Thèse UPS encadrée par M. Hytch et M. Legros. Encadrement pour la nanomanipulation et l’holographie électronique.
- [Bio15] M. Bionta. *New Experiment for Understanding the Physical Mechanisms of Ultrafast Laser-Induced Electron Emission from Novel Metallic Nanotips*. PhD thesis, Université Paul Sabatier, Toulouse, 2015. Thèse UPS encadrée par B. Chalopin et B. Chatel. Encadrement pour la nanomanipulation, l’émission de champs et la caractérisation MEB et MET.
- [Nun15] Marc Eroles Nunez. *Nanoetching and Structural and Electrical Characterisation of Crystalline Graphene Nanoribbons*. PhD thesis, Université Paul Sabatier - Toulouse III, November 2015. Thèse UPS encadrée par E. Dujardin. Encadrement pour la microscopie haute résolution basse tension.
- [Wan16] Rongrong Wang. *Dopage de Nanostructures de Carbone Pour l’émission de Champ*. Phd, Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, December 2016. **Thèse UPS co-encadrée avec R. Arenal (Université de Saragosse)**.
- [Nie16] Shunyang Nie. *The Investigation of 1D Nanocrystals Confined in Carbon Nanotubes*. PhD thesis, Université Paul Sabatier, 2016. Thèse UPS encadrée par M. Monthieux et E. Flahaut. Encadrement pour la nanofabrication et l’holographie électronique.
- [And20] Marie Ingrid Andersen. *Electron Holography Investigations of Ferromagnetic Nanowires*. PhD thesis, Université Paul Sabatier, 2020. Thèse UPS encadrée par C. Gatel et E. Snoeck. Encadrement pour la nanofabrication.

PostDoc

- [Kob11] Mathias Kobylyko. Microscopie électronique basse tension in situ. 18 Mois Post-Doc, CEMES, 2011. Formation à l'imagerie in situ basse tension. Mathias est parti pour un poste d'Enseignant-Chercheur à Polytechnique.
- [Cas12] Célia Castro. Holographie électronique basse tension pour le dénombrement de feuillets de Graphène. 18 Mois Post-Doc, CEMES, 2012. Formation à l'imagerie et l'holographie basse tension. Célia est partie pour un Posted'Ingénieur de Recherche à Rouen.
- [Cam15] Marco Campanini. Moirés par échantillons multiples dans une colonne électronique. 1 Mois Post-Doc, CEMES, 2015. Du fait de problèmes personnels, le post doc de Marco n'a duré qu'un mois.
- [Mar16] Cecile Marcelot. Moirés par échantillons multiples dans une colonne électronique. 18 Mois Post-Doc, CEMES, 2016. Le Postdoc de Cécile lui a surtout permis de se familiariser avec l'I2TEM et lui a permis d'obtenir un poste d'ingénieur permanent au laboratoire.
- [Cer18] Abraao Cerfas. Développement de dispositifs type transistor pour le remplissage et la caractérisation électrique de nanostructure de carbone DogBone. 18 Mois Post-Doc, CEMES, 2018. Formation à la nanofabrication et la microscopie in situ.

Non cités dans le manuscrit

- [Ser16] Raphael Serra. Préparation et Wire Bonding pour les échantillons en microscopie in operando. 18 Mois Post-Doc, CEMES, 2016. Formation à la nanofabrication.
- [Cha18] Lucas Chapuis. Instrumentations et Mesures Physiques autour de la microscopie in operando. Durée : 18 Mois Ingénieur Electronique, CEMES, 2018. Lucas est recruté en tant qu'ingénieur en Electronique non pas en Post-Doc et réalise divers développement autour de la microscopie in situ.

Stages

- [Sal09] Violaine Salvador. Préparation FIB pour l'holographie in situ d'alliage à anisotropie perpendiculaire. 4 Mois Stage, Master 2 CNAM, 2009.
- [Vig12] Marion Vigier. Fabrication de pointes en tungstène. 1 Mois Stage, L2 Physique (Toulouse), 2012.
- [LH13] Thibaut Lepetre and Karim Hamga. Développement d'un Banc réduit d'optique électronique. 2 Mois Sur 1 An Stage, 4e année INSA, 2013.
- [CP13] Kristell Courtois and Clement Puech. Développement d'une expérience d'interférométrie optique. 2 Mois (Sur 1 An) Stage, 4e année INSA, 2013.
- [Mau13] Rémi Mauduit. Membranes Ultrafines pour la Microscopie en Transmission. 2 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2013.
- [NL14] Alizee Navarro and Charline Lachaussée. Développement d'un banc de démonstration d'optique électronique. 2 Mois (Sur 1 An) Stage, 4e année INSA, 2014.
- [Bed14] Vincent Bedel. Emission de champ de pointes métalliques. 2 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2014.
- [Bra15] Guillaume Branly. Préparation et observation de nanocomposites pour l'optique électronique. 4 Mois Stage, Ingénieur Polytech (Lille), 2015.

- [Moh15] Firdaus Mohamad. Membranes ultrafines pour la microscopie électronique en transmission. 2 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2015.
- [EC16] Anoulak Elfassi and Lucas Chapuis. Instrumentation d'une plateforme de nano-assemblage. 2 Mois Sur 1 An Stage, 4e année INSA, 2016.
- [Gar16] Robin Garbay. Membranes fines et dispositifs. 4 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2016.
- [LH17] Marie Loustau and Anissa Hamzaoui. Amélioration d'une interface homme/machine pour une plateforme de nano-assemblage. 2 Mois Sur 1 An Stage, 4e année INSA, 2017.
- [Vil17] Gerardo Villavicencio. Réalisation d'un banc de fabrication de pointes ultra-fines pour la microscopie électronique au CEMES. 3 Mois Stage, DUT Electronique UPS, 2017.
- [Vig18] Alizee Vigneau. Nanoadressage sur support transparent aux électrons : Etats des Lieux et Perspectives. 2 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2018.
- [Hoa18] Floriane Hoareau. Développement de l'ingénierie de nanoadressage sur support transparent aux électrons. 2 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2018.
- [Rav18] Laingo Ravoniarimanana. Reactive Ion Etching et Nitrures fins. Stage 100 %, M1 Matériaux (Toulouse), 2018.
- [Pes18] Romain Pessato. Réalisation d'un banc de fabrication de pointes ultra-fines pour la microscopie électronique au CEMES. 2 Mois Stage, DUT Electronique UPS, 2018.

Non cités dans le manuscrit

- [Tot08] Matthieu Tottet. Solution C++ pour le traitement d'image sous Digital Micrograph. 4 Mois Stage, IUT Informatique (Annecy), 2008.
- [Jav10] Elsa Javon. Holographie Electronique in situ pour tetes de lecture à jonction tunnel magnétique. 4 Mois Stage, Master 2 Sciences de la Matière, 2010.
- [Sou14] Manon Soulié. Alimentation et interfaçage d'un banc d'émission de champ électrostatique. 2 Mois Stage, L3 électronique/Automatique (Albi), 2014.
- [Bla16] Guillaume Blanc. Développement et fabrication de contacts électriques sur membranes ultra fines pour la microscopie électronique en transmission in-situ. 2 Mois Stage, M1 Matériaux (Toulouse), 2016.
- [LA17] Mailys Labandibar and Romain Arguel. Croissance instrumentée de nanocônes de carbone. 2 Mois Sur 1 An Stage, 4e année INSA, 2017.
- [Kai18] Kai Eriksen & Hasnain Malik. Analyse en fréquence des impédances de la microscopie électronique in situ. 2 Mois Sur 1 An Stage, 4e année INSA, 2018.

Description des projets coordonnés

- [Cha12] B. Chalopin. LASCAR : Génération de pulses d'électrons ultrabrefs et d'harmoniques d'ordre élevé à partir de l'interaction d'une impulsion LASer ultrabrève et d'un nanotube de CARbone unique, 2012. [Projet du Labex NEXT](#).
- [Mas12] A. Masseboeuf. MINOU : Interférométrie et nanométrie multiple de l'objet unique, 2012. [Projet financé au titre de la Mission Interdisciplinarité du CNRS](#) visant à coupler plusieurs techniques de caractérisation sur un seul nano-objet, en collaboration avec l'Institut Néel et le LNCMI de Toulouse.

- [SE16] E. Snoeck E. ESTEEM2 : Enabling Science and Technology through European Electron Microscopy, 2012-2016. Projet Européen (FP7) proposant des activités de recherche et de service via 14 laboratoires de microscopie européenne. J'étais en charge pour le CEMES de la partie Optimisation de la préparation des échantillons : définition, préparation et caractérisation d'échantillons modèle via différentes techniques de préparation. [Le site ayant disparu, je renvoie vers le rapport final sur le site de la Commission Européenne.](#)
- [Mon14] M. Monthieux. CANAC : CARbon NAnoCones, 2013 - 2014. Projet ANR émergence visant à la commercialisation des pointes de carbones comme sources électronique et comme pointes AFM. J'étais responsable de la tâche d'assemblage des pointes de carbone. [Description sur le site de l'ANR.](#)
- [Cha17] B. Chalopin. LASCAR : Multiple Interferométrie & Moirés with Electrons, 2013 - 2017. Projet ANR PRC faisant suite au projet de Labex. Développement de l'interaction entre champ électrique laser ultra rapide et le cône de carbone. Projet impliquant l'IRSAMC (coordinateur), le CEMES et l'INA de Saragosse. J'étais responsable de la tâche émission de champs. [Description sur le site de l'ANR.](#)
- [Mas15] A. Masseboeuf. MIME : Multiple Interferométrie & Moirés with Electrons, 2015. Projet du Labex NEXT de Toulouse pour le développement de techniques de microscopie impliquant l'interférométrie holographique et les Moirés avec plusieurs échantillons. [Description sur le site du Labex.](#)
- [Ewe16] C. Ewels. EdgeFILLER : Remplissage sélectif des bords de nanotubes de carbone aplatis pour utilisation en nanoélectronique, 2016. [Projet ANR PRC.](#)
- [Gat21] C. Gatel. IODA : In Operando electron microscopy for Device Analysis, 2018 - 2021. Projet ANR PRCE entre le CEMES et STmicroelectronics. Développement de l'holographie In Operando sur des dispositifs de la microélectronique. Je suis responsable des expériences de TEM in Operando. [Site en Construction.](#)
- [Mas21] A. Masseboeuf. MILF : Magnetic Imaging @ Low dimensions & high Frequencies, 2019 - 2021. Projet ANR JCJC financé au titre de l'AAP2018 pour la mise en place d'une imagerie magnétique stroboscopique dans le TEM ainsi que sa comparaison aux diverses autres techniques d'imagerie résolue en temps actuelles. Il a notamment été construit autour d'une collaboration très forte entre Toulouse et Grenoble. Il a officiellement démarré au 1er décembre 2018.

Rapports d'expertise et Notes de synthèse

- [MA16a] Aurélien Masseboeuf A. [La Structure Tridimensionnelle Du Renversement de Cœur de Vortex.](#) Chronique, OMNT, September 2016.
- [MA16c] Aurélien Masseboeuf A. [Mouvement de Parois Magnétiques Dans Des Nanotubes.](#) Chronique, OMNT, December 2016.
- [MA16d] Aurélien Masseboeuf A. [Vers Une Nouvelle Forme d'électronique et d'électricité.](#) Note de Synthèse, OMNT, August 2016.
- [MA17a] Aurélien Masseboeuf A. [Des Skyrmions de Surface à Champ Nul et Température Ambiante.](#) Chronique, OMNT, July 2017.
- [MA17b] Aurélien Masseboeuf A. [La Zoologie Des Skyrmions s'agrandit.](#) Chronique, OMNT, July 2017.

[MA17d] Aurélien Masseboeuf A. Piégeage de Parois Magnétiques Dans Des Nanofils. Chronique, OMNT, July 2017.

[MH17] Aurélien Masseboeuf and L. Herrera-Diez. Dynamique de Paroi Magnétique : Développements Théoriques et Expérimentaux. Synthèse Annuelle, OMNT, April 2017.

Non cités dans le manuscrit

[MA16b] Aurélien Masseboeuf A. L'ingénierie d'interface Pour Le Contrôle de l'anisotropie. Chronique, OMNT, September 2016.

[MA17c] Aurélien Masseboeuf A. Mise En Évidence d'une Phase Magnétique Métastable Par Impulsion Laser Ultra-Rapide. Chronique, OMNT, April 2017.

Bibliographie du manuscrit

[85] Y. Aharonov and D. Bohm. Significance Of Electromagnetic Potentials In The Quantum Theory. *Physical Review*, 115(3) :485–491, 1959.

[86] R. Alhalabi, E. Nowak, I. Prejbeanu, and G. D. Pendina. High density SOT-MRAM memory array based on a single transistor. In *2018 Non-Volatile Memory Technology Symposium (NVMTS)*, pages 1–3, October 2018.

[87] Arnaud Arbouet, Giuseppe M. Caruso, and Florent Houdellier. Chapter One - Ultrafast Transmission Electron Microscopy : Historical Development, Instrumentation, and Applications. In Peter W. Hawkes, editor, *Advances in Imaging and Electron Physics*, volume 207 of *Advances in Imaging and Electron Physics*, pages 1–72. Elsevier, January 2018.

[88] Céline Barchasz, Frédéric Mesguich, Jean Dijon, Jean-Claude Leprêtre, Sébastien Patoux, and Fannie Allain. Novel positive electrode architecture for rechargeable lithium/sulfur batteries. *Journal of Power Sources*, 211 :19–26, August 2012.

[89] M. A. Basith, S. McVitie, D. McGrouther, J. N. Chapman, and J. M. R. Weaver. Direct comparison of domain wall behavior in permalloy nanowires patterned by electron beam lithography and focused ion beam milling. *Journal of Applied Physics*, 110(8) :083904–083904–8, October 2011.

[90] Manuel Baumgartner, Kevin Garello, Johannes Mendil, Can Onur Avci, Eva Grimaldi, Christoph Murer, Junxiao Feng, Mihai Gabureac, Christian Stamm, Yves Acremann, Simone Finizio, Sebastian Wintz, Jörg Raabe, and Pietro Gambardella. Spatially and time-resolved magnetization dynamics driven by spin-orbit torques. *Nature Nanotechnology*, 12(10) :980–986, October 2017.

[91] M. J. Benitez, A. Hrabec, A. P. Mihai, T. A. Moore, G. Burnell, D. McGrouther, C. H. Marrows, and S. McVitie. Magnetic microscopy and topological stability of homochiral Néel domain walls in a Pt/Co/AlO_x trilayer. *Nature Communications*, 6 :8957, December 2015.

[92] Nicolas Biziere, Christophe Gatel, Remy Lassalle-Balier, Marie Claude Clochard, Jean Eric Wegrowe, and Etienne Snoeck. Imaging the Fine Structure of a Magnetic Domain Wall in a Ni Nanocylinder. *Nano Letters*, 13(5) :2053–2057, May 2013. WOS :000318892400029.

[93] F. Bloch. Zur Theorie des Austauschproblems und der Remanenzerscheinung der Ferromagnetika. *Zeitschrift für Physik*, 74(5–6) :295–335, May 1932.

[94] O. Bostanjoglo and Th Rosin. Ultrasonically Induced Magnetic Reversals Observed by Stroboscopic Electron Microscopy. *Optica Acta : International Journal of Optics*, 24(6) :657–664, June 1977.

[95] Olivier Boulle, Jan Vogel, Hongxin Yang, Stefania Pizzini, Dayane de Souza Chaves, Andrea Locatelli, Tevfik Onur Menteş, Alessandro Sala, Liliana D. Buda-Prejbeanu, Olivier Klein, Mohamed Belmeuguenai, Yves Roussigné, Andrey Stashkevich, Salim Mourad Chérif, Lucia Aballe, Michael Foerster, Mairbek Chshiev, Stéphane Auffret, Ioan Mihai Miron, and Gilles Gaudin. Room-temperature chiral magnetic skyrmions in ultrathin magnetic nanostructures. *Nature Nanotechnology*, 11(5) :449–454, May 2016.

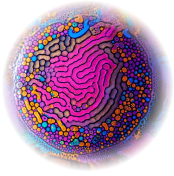
- [96] F. Cayssol, D. Ravelosona, C. Chappert, J. Ferré, and J. P. Jamet. Domain Wall Creep in Magnetic Wires. *Physical Review Letters*, 92(10) :107202, March 2004.
- [97] Zongping Chen, Wencai Ren, Libo Gao, Bilu Liu, Songfeng Pei, and Hui-Ming Cheng. Three-dimensional flexible and conductive interconnected graphene networks grown by chemical vapour deposition. *Nature Materials*, 10(6) :424–428, June 2011.
- [98] Eunmi Choi, Su Jin Chae, Areum Kim, Keun Won Kang, Min Seok Oh, Soon Hyeong Kwon, Sung Pil Yoon, and Sung Gyu Pyo. Hybrid Electrodes of Carbon Nanotube and Reduced Graphene Oxide for Energy Storage Applications. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 15(11) :9104–9109, November 2015.
- [99] Jean-Pierre Cleuziou, Wolfgang Wernsdorfer, Thierry Ondarçuhu, and Marc Monthieux. Electrical Detection of Individual Magnetic Nanoparticles Encapsulated in Carbon Nanotubes. *ACS Nano*, 5(3) :2348–2355, 2011.
- [100] David Cooper, Cheng-Ta Pan, and Sarah Haigh. Atomic resolution electrostatic potential mapping of graphene sheets by off-axis electron holography. *Journal of Applied Physics*, 115(23) :233709, June 2014.
- [101] S. Da Col, S. Jamet, N. Rougemaille, A. Locatelli, T. O. Mendes, B. Santos Burgos, R. Afid, M. Darques, L. Cagnon, J. C. Toussaint, and O. Fruchart. Observation of Bloch-point domain walls in cylindrical magnetic nanowires. *Physical Review B*, 89(18) :180405, May 2014.
- [102] N. de Jonge, Myriam Allieux, Maya Doytcheva, Monja Kaiser, Kenneth B. K. Teo, Rodrigo G. Lacerda, and William I. Milne. Characterization of the field emission properties of individual thin carbon nanotubes. *Applied Physics Letters*, 85(9) :1607–1609, 2004. APL.
- [103] B. Dieny, R. Sousa, S. Bandiera, M. Castro Souza, S. Auffret, B. Rodmacq, J. P. Nozieres, J. Hérault, E. Gapihan, I. L. Prejbeanu, C. Ducruet, C. Portemont, K. Mackay, and B. Cambou. Extended scalability and functionalities of MRAM based on thermally assisted writing. In *2011 International Electron Devices Meeting*, pages 1.3.1–1.3.4, December 2011.
- [104] Maher F. El-Kady and Richard B. Kaner. Scalable fabrication of high-power graphene micro-supercapacitors for flexible and on-chip energy storage. *Nature Communications*, 4 :1475, online February 12, 2013.
- [105] C. P. Ewels and M. Glerup. Nitrogen Doping in Carbon Nanotubes. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 5(9) :1345–1363, September 2005.
- [106] F. Feldtkeller. Bloch lines in nickel-iron films. In *Electric and Magnetic Properties of Thin Metallic Layers*, pages 98–110. Koninklijke Vlaamse Acad., 1961.
- [107] A. Fernández-Pacheco, J. M. De Teresa, R. Córdoba, and M. R. Ibarra. Metal-insulator transition in Pt-C nanowires grown by focused-ion-beam-induced deposition. *Physical Review B*, 79(17) :174204, May 2009.
- [108] Amalio Fernández-Pacheco, Robert Streubel, Olivier Fruchart, Riccardo Hertel, Peter Fischer, and Russell P. Cowburn. Three-dimensional nanomagnetism. *Nature Communications*, 8 :15756, June 2017.
- [109] D. Gabor. A new microscopic principle. *NATURE*, 161 :777–778, 1948.
- [110] C. Gatel, F. Houdellier, and E. Snoeck. Dynamical holographic Moirés in a TEM. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 49(32) :324001, 2016.
- [111] C. Gatel, A. Lubk, G. Pozzi, E. Snoeck, and M. Hÿtch. Counting Elementary Charges on Nanoparticles by Electron Holography. *Physical Review Letters*, 111(2) :025501, July 2013.
- [112] Andre Geim and Konstantin Novoselov. The Nobel Prize in Physics. page 1, 2010.
- [113] J. Grollier, P. Boulenc, V. Cros, A. Hamzić, A. Vaurès, A. Fert, and G. Faini. Switching a spin valve back and forth by current-induced domain wall motion. *Applied Physics Letters*, 83(3) :509–511, July 2003.

- [114] L. O. Heflinger, R. F. Wuerker, and R. E. Brooks. Holographic Interferometry. *Journal of Applied Physics*, 37(2) :642–649, 1966.
- [115] R Hertel. Ultrafast domain wall dynamics in magnetic nanotubes and nanowires. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 28(48) :483002, December 2016.
- [116] A. Hrabec, J. Sampaio, M. Belmeguenai, I. Gross, R. Weil, S. M. Chérif, A. Stashkevich, V. Jacques, A. Thiaville, and S. Rohart. Current-induced skyrmion generation and dynamics in symmetric bilayers. *Nature Communications*, 8 :15765, June 2017.
- [117] Yiming Huai, Frank Albert, Paul Nguyen, Mahendra Pakala, and Thierry Valet. Observation of spin-transfer switching in deep submicron-sized and low-resistance magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 84(16) :3118–3120, April 2004.
- [118] A. Hubert and R. Shafer. *Magnetic Domains*. Springer, 1998.
- [119] Sumio Iijima. Helical microtubules of graphitic carbon. *Nature*, 354(6348) :56–58, November 1991.
- [120] Yurii P. Ivanov, Andrey Chuvilin, Sergei Lopatin, Hanan Mohammed, and Jurgen Kosel. Direct Observation of Current-Induced Motion of a 3D Vortex Domain Wall in Cylindrical Nanowires. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 9(20) :16741–16744, May 2017.
- [121] S. Jamet, N. Rougemaille, J. C. Toussaint, and O. Fruchart. 25 - Head-to-head domain walls in one-dimensional nanostructures : An extended phase diagram ranging from strips to cylindrical wires. In Manuel Vázquez, editor, *Magnetic Nano- and Microwires*, Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials, pages 783–811. Woodhead Publishing, January 2015.
- [122] Wanjun Jiang, Xichao Zhang, Guoqiang Yu, Wei Zhang, Xiao Wang, M. Benjamin Jungfleisch, John E. Pearson, Xuemei Cheng, Olle Heinonen, Kang L. Wang, Yan Zhou, Axel Hoffmann, and Suzanne G. E. te Velthuis. Direct observation of the skyrmion Hall effect. *Nature Physics*, 13(2) :162–169, February 2017.
- [123] F. Junginger, M. Klaui, D. Backes, U. Rudiger, T. Kasama, R. E Dunin-Borkowski, L. J Heyderman, C. A. F Vaze, and J. A. C Bland. Spin torque and heating effects in current-induced domain wall motion probed by transmission electron microscopy. *Applied Physics Letters*, 90(13) :132506, March 2007.
- [124] András Kovács, Jan Caron, Andrii S. Savchenko, Nikolai S. Kiselev, Kiyoo Shibata, Zi-An Li, Naoya Kanazawa, Yoshinori Tokura, Stefan Blügel, and Rafal E. Dunin-Borkowski. Mapping the magnetization fine structure of a lattice of Bloch-type skyrmions in an FeGe thin film. *Applied Physics Letters*, 111(19) :192410, November 2017.
- [125] Martin Kreissig, R. Lebrun, F. Protze, K. J. Merazzo, J. Hem, L. Vila, R. Ferreira, M. C. Cyrille, F. Ellinger, V. Cros, U. Ebels, and P. Bortolotti. Vortex spin-torque oscillator stabilized by phase locked loop using integrated circuits. *AIP Advances*, 7(5) :056653, February 2017.
- [126] Changgu Lee, Xiaoding Wei, Jeffrey W. Kysar, and James Hone. Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene. *Science*, 321(5887) :385–388, July 2008.
- [127] Arm Ltd. Arm and Samsung Foundry push the possibilities of semiconductor manufacturing.
- [128] G. Matteucci, M. Muccini, and U. Hartmann. Flux measurements on ferromagnetic microprobes by electron holography. *Physical Review B*, 50(10) :6823–6828, September 1994.
- [129] G. Matteucci, M. Muccini, and U. Hartmann. Stray-field investigations on sharp ferromagnetic tips by electron holography. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 133(1–3) :422–424, May 1994.
- [130] Xiaochang Miao, Sefaattin Tongay, Maureen K. Petterson, Kara Berke, Andrew G. Rinzler, Bill R. Appleton, and Arthur F. Hebard. High Efficiency Graphene Solar Cells by Chemical Doping. *Nano Lett.*, 12(6) :2745–2750, 2012.
- [131] Marc Monthieux, editor. *Carbon Meta-Nanotubes : Synthesis, Properties and Applications*. Wiley, 1 edition, October 2011.

- [132] Marc Monthieux and Vladimir L. Kuznetsov. Who should be given the credit for the discovery of carbon nanotubes? *Carbon*, 44(9) :1621–1623, August 2006.
- [133] C. Moreau-Luchaire, C. Moutafis, N. Reyren, J. Sampaio, C. a. F. Vaz, N. Van Horne, K. Bouzehouane, K. Garcia, C. Deranlot, P. Warnicke, P. Wohlhüter, J.-M. George, M. Weigand, J. Raabe, V. Cros, and A. Fert. Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature. *Nature Nanotechnology*, 11(5) :444–448, May 2016.
- [134] J. Moritz, C. Arm, G. Vinai, E. Gautier, S. Auffret, A. Marty, P. Bayle-Guillemaud, and B. Dieny. Two-Bit-Per-Dot Patterned Media for Magnetic Storage. *IEEE Magnetics Letters*, 2 :4500104–4500104, 2011.
- [135] S. Muhlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Boni. Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet. *Science*, 323(5916) :915–919, February 2009.
- [136] K. S. Novoselov, Z. Jiang, Y. Zhang, S. V. Morozov, H. L. Stormer, U. Zeitler, J. C. Maan, G. S. Boebinger, P. Kim, and A. K. Geim. Room-Temperature Quantum Hall Effect in Graphene. *Science*, 315(5817) :1379–1379, March 2007.
- [137] Hyun Soon Park, Xiuzhen Yu, Shinji Aizawa, Toshiaki Tanigaki, Tetsuya Akashi, Yoshio Takahashi, Tsuyoshi Matsuda, Naoya Kanazawa, Yoshinori Onose, Daisuke Shindo, Akira Tonomura, and Yoshinori Tokura. Observation of the magnetic flux and three-dimensional structure of skyrmion lattices by electron holography. *Nature Nanotechnology*, 9(5) :337–342, April 2014.
- [138] Stuart S P Parkin, Masamitsu Hayashi, and Luc Thomas. Magnetic domain-wall racetrack memory. *Science*, 320(5873) :190–194, April 2008.
- [139] A Peigney, Ch Laurent, E Flahaut, and A Rousset. Carbon nanotubes in novel ceramic matrix nanocomposites. *Ceramics International*, 26(6) :677–683, July 2000.
- [140] N. Perrissin, S. Lequeux, N. Strelkov, A. Chavent, L. Vila, L. D. Buda-Prejbeanu, S. Auffret, R. C. Sousa, I. L. Prejbeanu, and B. Dieny. A highly thermally stable sub-20 nm magnetic random-access memory based on perpendicular shape anisotropy. *Nanoscale*, 10(25) :12187–12195, July 2018.
- [141] N. Perrissin, S. Lequeux, N. Strelkov, L. Vila, L. Buda-Prejbeanu, S. Auffret, R. C. Sousa, I. L. Prejbeanu, and B. Dieny. Spin transfer torque magnetic random-access memory : Towards sub-10 nm devices. In *2018 International Conference on IC Design Technology (ICICDT)*, pages 125–128, June 2018.
- [142] S. D. Pollard, L. Huang, K. S. Buchanan, D. A. Arena, and Y. Zhu. Direct dynamic imaging of non-adiabatic spin torque effects. *Nature Communications*, 3 :ncomms2025, August 2012.
- [143] Shawn D. Pollard, Joseph A. Garlow, Jiawei Yu, Zhen Wang, Yimei Zhu, and Hyunsoo Yang. Observation of stable Néel skyrmions in cobalt/palladium multilayers with Lorentz transmission electron microscopy. *Nature Communications*, 8, March 2017.
- [144] C. Portet, P.L. Taberna, P. Simon, E. Flahaut, and C. Laberty-Robert. High power density electrodes for Carbon supercapacitor applications. *Electrochimica Acta*, 50(20) :4174–4181, July 2005.
- [145] Vito Puliafito, Luis Torres, Ozhan Ozatay, Thomas Hauet, Bruno Azzerboni, and Giovanni Finocchio. Micromagnetic analysis of dynamical bubble-like solitons based on the time domain evolution of the topological density. *Journal of Applied Physics*, 115(17) :17D139, March 2014.
- [146] Aaron R. Rathmell, Minh Nguyen, Miaofang Chi, and Benjamin J. Wiley. Synthesis of Oxidation-Resistant Cupronickel Nanowires for Transparent Conducting Nanowire Networks. *Nano Letters*, 12(6) :3193–3199, June 2012.
- [147] D. Reyes, N. Biziere, B. Warot-Fonrose, T. Wade, and C. Gatel. Magnetic Configurations in Co/Cu Multilayered Nanowires : Evidence of Structural and Magnetic Interplay. *Nano Letters*, 16(2) :1230–1236, February 2016.
- [148] Andre Robert F. Curl, Jr, Sir Harold W. Kroto, and Richard E. Smalley. The Nobel Prize in Chemistry. 1996.

- [149] Luis Alfredo Rodríguez, Cristina Bran, David Reyes, Eider Berganza, Manuel Vázquez, Christophe Gatel, Etienne Snoeck, and Agustina Asenjo. Quantitative Nanoscale Magnetic Study of Isolated Diameter-Modulated FeCoCu Nanowires. *ACS Nano*, 10(10) :9669–9678, October 2016.
- [150] N. Rougemaille, V. Uhlř, O. Fruchart, S. Pizzini, J. Vogel, and J. C. Toussaint. Phase diagram of magnetic domain walls in spin valve nano-strips. *Applied Physics Letters*, 100(17) :172404, April 2012.
- [151] Laura Schaedel, Karin John, Jérémie Gaillard, Maxence V. Nachury, Laurent Blanchoin, and Manuel Théry. Microtubules self-repair in response to mechanical stress. *Nature Materials*, 14(11) :1156–1163, November 2015.
- [152] S. Schaefer, E.-M. Felix, F. Muench, M. Antoni, C. Lohaus, J. Brötz, U. Kunz, I. Gärtner, and W. Ensinger. NiCo nanotubes plated on Pd seeds as a designed magnetically recollectable catalyst with high noble metal utilisation. *RSC Advances*, 6(74) :70033–70039, 2016.
- [153] C. Schönenberger, B. M. I. van der Zande, L. G. J. Fokkink, M. Henny, C. Schmid, M. Krüger, A. Bachtold, R. Huber, H. Birk, and U. Stauer. Template Synthesis of Nanowires in Porous Polycarbonate Membranes : Electrochemistry and Morphology. *The Journal of Physical Chemistry B*, 101(28) :5497–5505, July 1997.
- [154] Luis Serrano-Ramón, Rosa Córdoba, Luis Alfredo Rodríguez, César Magén, Etienne Snoeck, Christophe Gatel, Inés Serrano, Manuel Ricardo Ibarra, and José María De Teresa. Ultrasmall Functional Ferromagnetic Nanostructures Grown by Focused Electron-Beam-Induced Deposition. *ACS Nano*, 5(10) :7781–7787, October 2011.
- [155] Anjan Soumyanarayanan, M. Raju, A. L. Gonzalez Oyarce, Anthony K. C. Tan, Mi-Young Im, A. P. Petrović, Pin Ho, K. H. Khoo, M. Tran, C. K. Gan, F. Ernult, and C. Panagopoulos. Tunable room-temperature magnetic skyrmions in Ir/Fe/Co/Pt multilayers. *Nature Materials*, 16(9) :898–904, September 2017.
- [156] Sasha Stankovich, Dmitriy A. Dikin, Geoffrey H. B. Dommett, Kevin M. Kohlhaas, Eric J. Zimney, Eric A. Stach, Richard D. Piner, SonBinh T. Nguyen, and Rodney S. Ruoff. Graphene-based composite materials. *Nature*, 442(7100) :282–286, July 2006.
- [157] Michal Staño. *Magnetic Microscopy of Domains and Domain Walls in Ferromagnetic Nanotubes*. PhD thesis, Université Grenoble Alpes, October 2017.
- [158] Michal Staño, Sandra Schaefer, Alexis Wartelle, Maxime Rioult, Rachid Belkhou, Alessandro Sala, Tevfik Onur Menteş, Andrea Locatelli, Laurent Cagnon, Beatrix Trapp, Sebastian Bochmann, Sylvain Martin, Eric Gautier, Jean-Christophe Toussaint, Wolfgang Ensinger, and Olivier Fruchart. Imaging magnetic flux-closure domains and domain walls in electroless-deposited CoNiB nanotubes. *arXiv :1704.06614 [cond-mat]*, April 2017.
- [159] Robert Streubel, Peter Fischer, Florian Kronast, Volodymyr P. Kravchuk, Denis D. Sheka, Yuri Gaididei, Oliver G. Schmidt, and Denys Makarov. Magnetism in curved geometries. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 49(36) :363001, 2016.
- [160] Robert Streubel, Charles-Henri Lambert, Noah Kent, Peter Ercius, Alpha T. N’Diaye, Colin Ophus, Sayeef Salahuddin, and Peter Fischer. Experimental Evidence of Chiral Ferrimagnetism in Amorphous GdCo Films. *Advanced Materials*, 30(27) :1800199, 2018.
- [161] Toshiaki Tanigaki, Kiyou Shibata, Naoya Kanazawa, Xiuzhen Yu, Yoshinori Onose, Hyun Soon Park, Daisuke Shindo, and Yoshinori Tokura. Real-Space Observation of Short-Period Cubic Lattice of Skyrmions in MnGe. *Nano Letters*, 15(8) :5438–5442, August 2015.
- [162] André Thiaville and Yoshinobu Nakatani. Domain-Wall Dynamics in Nanowires and Nanostrips. In Burkard Hillebrands and André Thiaville, editors, *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures III*, volume 101 of *Topics in Applied Physics*, pages 161–205. Springer Berlin / Heidelberg, 2006.
- [163] L. Tillie, E. Nowak, R. C. Sousa, M. Cyrille, B. Delaet, T. Magis, A. Persico, J. Langer, B. Ocker, I. Prejbeanu, and L. Perniola. Data retention extraction methodology for perpendicular STT-MRAM. In *2016 IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM)*, pages 27.3.1–27.3.4, December 2016.

- [164] Akira Tonomura, Nobuyuki Osakabe, Tsuyoshi Matsuda, Takeshi Kawasaki, Junji Endo, Shinichiro Yano, and Hiroji Yamada. Evidence for Aharonov-Bohm effect with magnetic field completely shielded from electron wave. *Physical Review Letters*, 56(8) :792–795, February 1986.
- [165] A. C. Twitchett, R. E. Dunin-Borkowski, R. J. Hallifax, R. F. Broom, and P. A. Midgley. Off-axis electron holography of electrostatic potentials in unbiased and reverse biased focused ion beam milled semiconductor devices. *Journal of Microscopy*, 214(3) :287–296, 2004.
- [166] J Vogel, S Cherifi, S Pizzini, F Romanens, J Camarero, F Petroff, S Heun, and A Locatelli. Layer-resolved imaging of domain wall interactions in magnetic tunnel junction-like trilayers. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19(47) :476204, November 2007.
- [167] Chun Wang, Liang Qiao, Chaoqun Qu, Weitao Zheng, and Qing Jiang. First-Principles Calculations on the Emission Properties of Pristine and N-Doped Carbon Nanotubes. *The Journal of Physical Chemistry C*, 113(3) :812–818, January 2009.
- [168] R. Z. Wang, B. Wang, H. Wang, H. Zhou, A. P. Huang, M. K. Zhu, H. Yan, and X. H. Yan. Band bending mechanism for field emission in wide-band gap semiconductors. *Applied Physics Letters*, 81(15) :2782–2784, October 2002.
- [169] B. Warot-Fonrose, C. Gatel, L. Calmels, V. Serin, and P. Schattschneider. Effect of spatial and energy distortions on energy-loss magnetic chiral dichroism measurements : Application to an iron thin film. *Ultramicroscopy*, 110(8) :1033–1037, July 2010. WOS :000281216600015.
- [170] P. Weiss. L’hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique. *Journal de Physique Théorique et Appliquée*, 6(1) :661–690, 1907.
- [171] Lei Wen, Feng Li, and Hui-Ming Cheng. Carbon Nanotubes and Graphene for Flexible Electrochemical Energy Storage : From Materials to Devices. *Advanced Materials*, 28(22) :4306–4337, June 2016.
- [172] Florian Winkler, Amir H. Tavabi, Juri Barthel, Martial Duchamp, Emrah Yucelen, Sven Borghardt, Beata E. Kardynal, and Rafal E. Dunin-Borkowski. Quantitative measurement of mean inner potential and specimen thickness from high-resolution off-axis electron holograms of ultra-thin layered WSe₂. *Ultramicroscopy*, 178 :38–47, July 2017.
- [173] D. W. Wong, I. Purnama, G. J. Lim, W. L. Gan, C. Murapaka, and W. S. Lew. Current-induced three-dimensional domain wall propagation in cylindrical NiFe nanowires. *Journal of Applied Physics*, 119(15) :153902, April 2016.
- [174] H.-P. Wong. Beyond the conventional transistor. *IBM Journal of Research and Development*, 46(2.3) :133–168, March 2002.
- [175] S. M. H. Wong. What exactly is a Skyrmion? *arXiv :hep-ph/0202250*, February 2002.
- [176] Min Le Wu, Yun Chen, Liang Zhang, Hang Zhan, Lei Qiang, and Jian Nong Wang. High-Performance Carbon Nanotube/Polymer Composite Fiber from Layer-by-Layer Deposition. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 8(12) :8137–8144, March 2016.
- [177] Yufu Xu, Yubin Peng, Tao You, Lulu Yao, Jian Geng, Karl D. Dearn, and Xianguo Hu. Nano-MoS₂ and Graphene Additives in Oil for Tribological Applications. In Tawfik Abdo Saleh, editor, *Nanotechnology in Oil and Gas Industries*, pages 151–191. Springer International Publishing, Cham, 2018.
- [178] X. Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W. Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui, and Y. Tokura. Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe. *Nat Mater*, 10(2) :106–109, February 2011.
- [179] Fengshan Zheng, Hang Li, Shasha Wang, Dongsheng Song, Chiming Jin, Wenshen Wei, András Kovács, Jiadong Zang, Mingliang Tian, Yuheng Zhang, Haifeng Du, and Rafal E. Dunin-Borkowski. Direct imaging of a zero-field target skyrmion and its polarity switch in a chiral magnetic nanodisk. *arXiv :1706.06923 [cond-mat]*, June 2017.
- [180] Yimei Zhu, editor. *Modern Techniques for Characterizing Magnetic Materials*. Springer, Boston, Mass., 2005 edition edition, April 2005.



Annexes

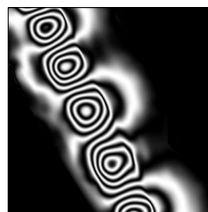
Sommaire

Curriculum Vitae	54
Publications Sélectionnées	56
<u>Physical Review Letters</u> (2010) 104 , 127204	56
<u>Carbon</u> (2012) 50 , 2037	60
<u>Micron</u> (2014) 63 , 2	68
<u>NanoResearch</u> (2014) 8 , 1241	75
<u>Ultramicroscopy</u> (2016) 164 , 24	84

MASSEBOEUF Aurélien

Scientist, CNRS

Physics and materials – Electron Microscopy

<http://aurelien.masseboeuf.fr>

CEMES – 29 rue Jeanne Marvig
31400 Toulouse
TÉL : 05.62.25.78.85
aurelien.masseboeuf@cemes.fr



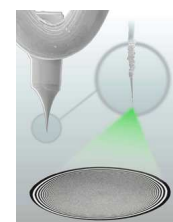
Born in 1980, 2 children

Research themes

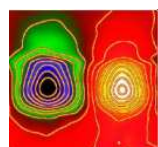
My research field is linked to **Transmission Electron Microscopy (TEM)**. Development of **imaging techniques** is performed both by modifying the instruments and with the help of theory and programming. Main applications of such developments are **in-situ holography** characterization of processes on **carbon** and/or **magnetic** objects at the nanometer scale from the development of new **Cold Field Emission Gun (CFEG)** based on **carbon nanotubes** to locale observation of **magnetic transformations**.

Milestones**2011** : Hired as scientist in CNRS*Development of in-situ Holography for the physical properties of unique stimulated objects via lab-on chip TEM development***2010-2011** : Post-Doctoral stay in CEA & CNRS, *Grenoble* - funded by *Nanosciences Foundation* – supervised by *J. Vogel & P. Bayle*
*In situ processes in magnetic material using advanced TEM characterisation combined with nanofabrication***2009-2010** : Post-Doctoral stay in CNRS, *Toulouse* - funding by *ANR HDStrain* - supervised by *M. Hÿtch & F. Houdellier*
*Implementation of a new cold field emitter based on carbon nanotube***2005-2008** : PhD Thesis in CEA & UJF, *Grenoble* - funding by *CEA* - supervised by *A. Marty & P. Bayle*
*Development of Lorentz Microscopy and Magnetic imaging in a TEM***2004** : Master's Degree in Université Joseph Fourier, *Grenoble* - *Physic for Instruments***2004** : Master's Degree in Ecole Polytechnique, *Montréal* - *scholarship collaboration***1998-2003** : Undergraduate scholarship in INSA, *Rennes* - *Materials & Nanotechnology speciality***Summary of scientific activities****Magnetism** : Domain wall motion with field and current, Micromagnetism fundamental studies, Magnetic imaging development**Carbon** : Carbon nanotubes manipulation, Low Tension TEM imaging, Field emission properties**Electron Microscopy** : Holography, Abberation correction, In-situ, Low-Voltage, sample holder design**Instrumental** : TEM, FIB, Lithography (e-beam & optic), UHV, Ultra-thin membranes, NanoTips elaboration**Computing** : Image (TEM) simulation, Python, Web, Linux**Communications** : 25 articles (+ 4 peer-reviewed proceedings), 1 book chapter, 2 invited talks**Supervising** : 1 PhD student (2013-2016), 3 Post-Doc supervision, Internships of undergraduate students (~ 3 / year)**Teaching** : Practicals and lectures given in Physics, Mechanics, Instrumentals, at University and in scientific schools**Important publications and Highlights****Quantitative Electron Microscopy 2013 & 2017 - Chair**www.qem2017.com

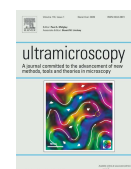
Review & News of Quantitative Electron Microscopy (20 invited lectures, 15 Practicals sessions)

TRANSMISSION ELECTRON MICROSCOPY IN MICRO-NANOELECTRONICS(A. Claverie / John Wiley & Sons, 2012) Book chapter (8) on *in situ* TEM ISBN: 978-1-84821-367-8Highlights in **CNRS – Institut de Physique (2012)**, **Ultra high brightness electron source...** =>
[INP-CNRS website](http://www.inp-cnrs.fr)**Physical Review Letters** 104 (2010) 127204, **Dimensionality crossover in magnetism : from domain wall to vortices**Masseboeuf A., Fruchart O., Toussaint J.C. *et al.*

doi:10.1103/PhysRevLett.104.127204

<= Highlights in **Nature Chemistry** (2009), **Electron holography: Measuring magnetism** by Neil Withers

doi:10.1038/nchem.325



2010 cover

Ultramicroscopy, 110 (2009) 20, **Lorentz microscopy mapping for domain walls structure study in L1₀FePd...** =>

Masseboeuf A., Gatel C., Bayle-Guillemaud P., Marty A., Toussaint J.-C

doi:10.1016/j.ultramic.2009.08.006

Dimensionality Crossover in Magnetism: From Domain Walls (2D) to Vortices (1D)A. Masseboeuf,^{1,*} O. Fruchart,^{2,†} J. C. Toussaint,^{2,3} E. Kritsikis,^{2,3,4} L. Buda-Prejbeanu,⁴ F. Cheynis,² P. Bayle-Guillemaud,¹ and A. Marty⁵¹CEA, INAC-SP2M, LEMMA, 17 rue des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9, France²Institut NÉEL, CNRS & Université Joseph Fourier, BP166– F-38042 Grenoble Cedex 9, France³Institut National Polytechnique de Grenoble, 38016 Grenoble, France⁴SPINTEC, URA 2512, CEA/CNRS, CEA/Grenoble, 38054 Grenoble Cedex 9, France⁵CEA, INAC-SP2M, NM, 17 rue des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9, France

(Received 14 September 2009; revised manuscript received 10 February 2010; published 26 March 2010)

Dimensionality crossover is a classical topic in physics. Surprisingly, it has not been searched in micromagnetism, which deals with objects such as domain walls (2D) and vortices (1D). We predict by simulation a second-order transition between these two objects, with the wall length as the Landau parameter. This was confirmed experimentally based on micron-sized flux-closure dots.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.127204

PACS numbers: 75.60.Ch

Dimensionality crossover is a rich topic in theoretical and experimental physics. It has been widely addressed in the frame of phase transition and critical exponents, e.g., in magnetism [1,2]. Beyond this microscopic level it is known that materials in an ordered state may be split in domains [3]. In the study of magnetization configurations, a field known as micromagnetism, objects have tentatively been classified according to their dimensionality. Magnetic domains are 3D, domain walls (DWs) are 2D, Bloch lines (i.e., so-called either vortices or antivortices) are 1D, Bloch points are 0D [4,5]. Each class may serve as a boundary to the class of immediately greater dimensionality: DWs are found at domain boundaries, Bloch lines inside domain walls to separate areas with opposite winding [3,5], and Bloch points separate two parts of a vortex with opposite polarities [4,6]. Beyond magnetism, the notions of DWs and vortices are shared by all states of matter ordered with a unidirectional order parameter, i.e., characterized by a vector field \mathbf{n} with $|\mathbf{n}| = 1$. Liquid crystals in the nematic state have a uniaxial order parameter. A strict analogue of magnetic materials is the common case of slabs with anchoring conditions at both surfaces: upon application of a magnetic or electric field perpendicular to the easy axis of anchoring a breaking of symmetry occurs known as the Fredericks transition [7], transforming the order parameter in a unidirectional one. In this case both 180° domain walls and vortices occur [8,9], whose dynamics, topology and annihilation are being studied [10].

The study of magnetic DWs and vortices as objects that can be moved [11] and modified [12–15] in their inner structure is a timely topic, driven by proposals of their use in memory [16] and logic [17] devices. Despite this and the established dimensional classification mentioned above, surprisingly the possibility of a dimensionality crossover between a DW and a vortex has not been addressed. Thus, beyond the aesthetics physical issue of dimensionality

crossover, the knowledge of how a DW may switch reversibly to a magnetic vortex should have a great importance in understanding and controlling their static and dynamic features. This transition has not been described either in analogous cases such as liquid crystals.

In this Letter we report on a dimensionality crossover from a DW (2D) to a vortex (1D). Although exemplified in the particular case of magnetic materials, this effect should occur in any state of matter characterized with a unidirectional order parameter. It should be noted that a dimensionality crossover was recently reported for the dynamics of motion of a domain wall along a stripe, whose behavior changes from two-dimensional pinning to one-dimensional pinning on structural defects when the width of the stripe is reduced below typically the distance between major pinning sites [18]. This process however is very different, since it pertains to dynamic processes, and also is extrinsic because it relies on structural defects which depend on the material, method of deposition, and nanofabrication.

For our demonstration we considered epitaxial micron-sized magnetic dots in a flux-closure state. Depending on the dot geometry (size and aspect ratio), the flux may be closed around a vortex [12] or a DW of finite length [19]. The use of an epitaxial material ensures that the results are not biased by microstructural pinning. Besides the dots display sharp and well-defined edges, so that their dimensions can be measured with accuracy. It is known that the topology of Bloch DWs of finite length and of vortices is identical, the former being obtained from the latter by a continuous deformation [19–21]. Thus the question of a transition from a DW to a magnetic vortex arises naturally. We first show by simulation that a wall tends to collapse into a vortex at a critical length of a few tens of nanometers. The transition is of second order, with the wall length as the order parameter. This is confirmed quantitatively by experiments based on micron-sized self-

assembled epitaxial dots, both with the dot geometry and an external magnetic field as the driving parameter, showing the generality and robustness of the transition.

Let us describe our methods. Micromagnetic simulations of prisms were performed using `GL FFT`, a finite-differences code [22]. The cell size was $3.91 \times 3.91 \times 3.13$ nm or lower and the parameters for bulk Fe were used with an Fe(110) orientation [15]. Simulations of trigonal fcc Co(111) dots were performed using `FEELGOOD`, a finite-elements code [23]. The mean cell size was 2.6 nm. Both codes have been custom-developed and are based on the temporal integration of the Landau-Lifshitz-Gilbert equation. The experimental systems consist of self-assembled micron-size Co(111) [24] and Fe(110) [15] dots, epitaxially grown under ultrahigh vacuum using pulsed-laser deposition [25]. These were grown on a single-crystalline 10 nm-thick W buffer layer deposited on sapphire (11 $\bar{2}$ 0) wafers, and capped with a 5 nm-thick Au layer to prevent oxidation. The wafer was then thinned by mechanical polishing and ion milling. Lorentz microscopy was performed in the Fresnel mode using a JEOL 3010 microscope equipped with a GATAN imaging filter. In this mode DWs (vortices) are highlighted as dark or bright lines (dots) depending on the chirality of magnetization curling around the DW or vortex [26]. The images are formed with a dedicated mini-lens, while an axial magnetic field can be added using the conventional objective lens.

We first present the results of simulation. As a textbook case we consider flat prismatic dots with fixed height-over-width ratio 0.2 and thickness 50 nm and above. The prismatic shape and use of finite differences ensure high accuracy results for the description of the phase transition. The length, taken along the in-plane Fe[001] direction, is varied from 1 to 1.5 with respect to the width. As expected for elongated dots of such thickness [19–21] a Landau state occurs, displaying two main longitudinal domains separated by a Bloch DW [Figs. 1(b) and 1(d)]. The DW displays perpendicular magnetization in its core, while it is terminated at each surface by an area with in-plane magnetization, the *Néel* caps [27]. At each end of the DW the magnetic flux escapes through a surface vortex. We define the length of the DW as the distance between the projections into the film plane of the locii of these two vortices [Fig. 1(d)]. From this definition a vortex is a DW with zero length, such as found, e.g., for a dot with a square base [Figs. 1(a) and 1(c)]. Series of simulations of the equilibrium state for variable dot length were performed. At each stage the magnetization map is stretched or compressed along the length to serve as a crude input for the map of the next value of length, for which the equilibrium state is again calculated. The series was performed once with rising length, then again with decreasing length back to the square base. This yielded identical results, ruling out the possibility of metastable configurations biasing the results. To avoid discretization artifacts the number of cells

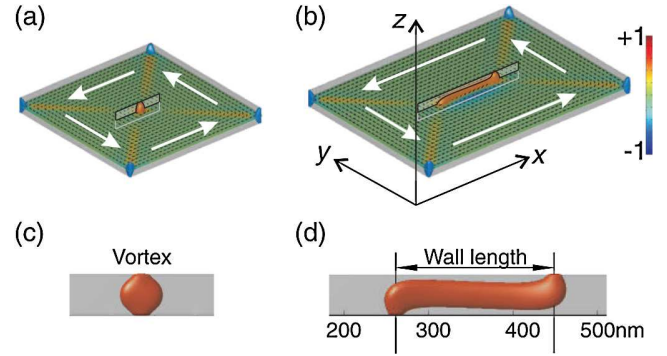


FIG. 1 (color online). Simulated magnetization states in flat Fe(110) dots with size (a) $500 \times 500 \times 50$ nm: vortex state and (b) $500 \times 750 \times 50$ nm: Landau state consisting of a Bloch wall separating two antiparallel domains. The color stands for the direction of magnetization along z , see right scale. In these open views the only parts displayed as volumes are those where m_z is greater than 0.5. This highlights the central vortex or Bloch wall (red) and the magnetization areas close to the vertical edges of the prisms (blue). At all other places the surface displays magnetization in the midheight plane. (c)–(d) Views in the xz plane, corresponding to the framed areas in (a)–(b), respectively.

was kept constant for all simulations of a dot of given height. Instead, the length of each cell was varied progressively to fit the dot length. The dependence of the DW length with the dot length is shown on Fig. 2(a). For largely elongated dots the wall length increases linearly with slope 1. In this regime the two surface vortices are sufficiently apart one from another to have a negligible interaction. Their position is essentially determined by the minimization of the energy of the triangular closure domain along the two short sides of the dot. On the reverse in the low-length regime the DW length decreases faster than slope 1, so that the vortex state is reached before the dot has a square base. We define the *collapsed* length as the difference between the length of dot upon the collapse and the asymptotic linear variation of wall length for an elongated dot [Fig. 2(a)]. Plotting the square of the DW length versus the dot length reveals a linear variation. The crossover is therefore Landau-like, i.e., of second order. Such transitions are associated with a breaking of symmetry, which in the present case is whether the top surface vortex shifts towards $+x$ or $-x$. The results are qualitatively similar for other thicknesses. Figure 2(b) shows the results of similar finite-element simulations applied to trigonal Co(111) dots also 50 nm-thick, which display the very same physics. This suggests that the crossover is a general phenomenon, independent from the exact shape of the system.

These predictions have been confirmed experimentally. We first consider self-assembled face-centered cubic Co(111) dots. These have a trigonal symmetry reflecting their crystalline structure, with a base close to a regular hexagon [Fig. 3(b)] [24]. Whereas previous studies on such systems were dealing with very thin dots thus found in a

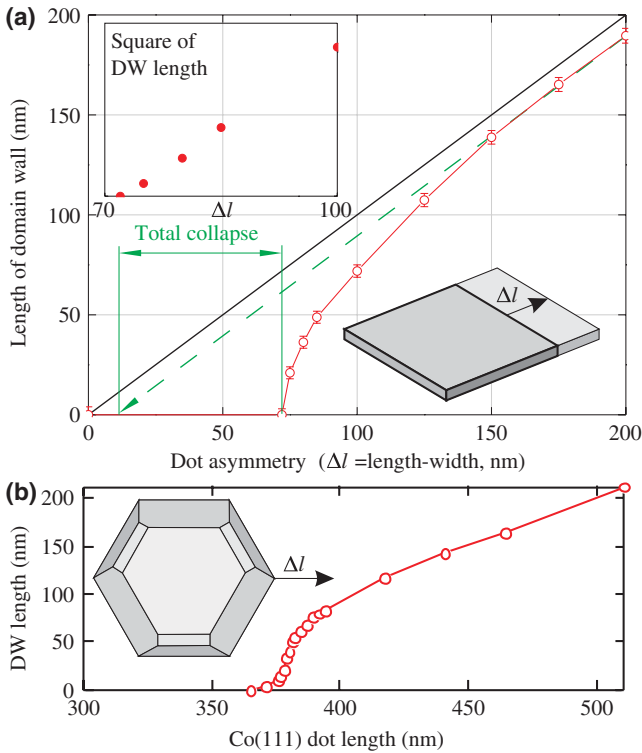


FIG. 2 (color online). (a) Open symbols: length of the Bloch wall in the simulated Landau state in an Fe(110) dot of thickness 50 nm, plotted versus the dot lateral asymmetry Δl (length minus width, see inset sketch). Linear line with slope +1: wall length in the simple geometrical van den Berg model (black line). Dotted line: asymptotic extrapolation from long dot, whose intercept with the x axis defines the total collapsed. Inset: squared length of Bloch wall, same x axis. (b) Similar simulations based on a Co(111) dot, here 50 nm-thick. The inset shows the detailed faceted shape of these dots [24].

nearly single-domain state [28], the thickness of our dots is in the range 50–200 nm inducing flux-closure states around a DW or vortex. These dots are perfectly suited for our needs because owing to the natural spread of shape occurring in self-assembly we can study the length of DWs as a function of the dot aspect ratio, by a statistical investigation of an assembly of dots over the same sample. For each dot we measured the experimental DW length, and computed the expected DW length predicted by the simple van den Berg geometrical construction. This construction is relevant for vanishing thickness and infinite dimensions [29], and equals the dot asymmetry used in the simulations so that a direct comparison with the data of Fig. 2 is possible. Figure 3(b) summarizes this analysis, performed over more than 30 dots. The collected results are quantitatively consistent with the simulation predictions. The experimental spread of points may be attributed first to errors in the measurement of both the DW length and dot dimensions, second to the spread of dot thickness as the collapsing length slightly depends on the thickness. Despite this spread, it shall be noticed that only vortices are observed

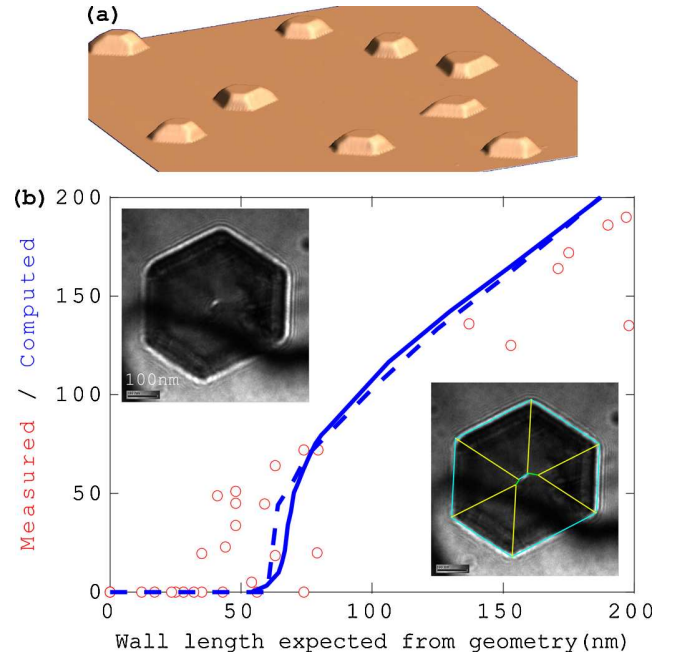


FIG. 3 (color online). (a) True Z-scale 3D view of a $6 \times 6 \mu\text{m}$ AFM image of self-assembled Co(111) dots (b) Open symbols: DW length measured in Co(111) dots plotted versus the length expected from the geometrical van den Berg construction. The predictions from simulations for the estimated thickness of the dot 116 nm are superimposed without adjustment, as guide to the eye, both for Fe(110) (dotted line) and Co(111) (full line). Insets: typical Co dot displaying a vortex (upper left) along with the associated construction predicting a DW (lower right, central blue line).

when the expected length lies below 40 nm. This cannot be attributed to an experimental limitation to identify short DWs, as many DWs with length below 40 nm have been measured. These however all lie for expected wall length above 40 nm. These correlations lie above statistical fluctuations, which unambiguously demonstrates the collapse of DWs towards vortices in a quantitative agreement with simulations.

To demonstrate the generality and robustness of the vortex-DW transformation we now consider an external field as the driving parameter for the transition. In this case we use Fe(110) dots, which by their crystallographic nature are elongated [25] [Fig. 4(a)]. Upon applying the saturating field with a tilt angle of a few degrees with respect to the normal to the plane, and the in-plane component oriented along its short length, the dot can be prepared in a diamond state, i.e., consisting of two flux-closure parts with opposite chiralities [Fig. 4(b)]. It happens that the application of a tilted field of moderate magnitude affects the length of the DWs [Fig. 4(c)] in a continuous way. The length of the DW to the right of the dot decreases with increasing field. When it reaches 21 ± 3 nm, which is comparable to the collapse length mentioned above, a stochastic switching was observed in real time between a Bloch wall and a vortex state

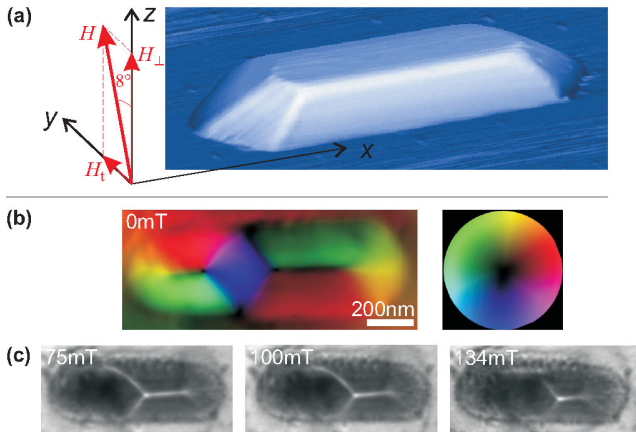


FIG. 4 (color online). (a) True Z-scale 3D AFM view of a typical Fe(110) dots, along with the geometry of the applied field. (b) map of the in-plane magnetization of a similar dot found in the diamond state, reconstructed from Fresnel images taken at different defocusing. (c) Series of Fresnel images of the same dot taken under a magnetic field applied tilted towards y . The labels indicate the value of the y component of the field.

with a characteristic time constant of 100 ms (see supplementary material). This confirms that the top and bottom surface vortices undergo a short-range attractive force, which is the driving force for the transition.

To conclude, we addressed the dimensionality crossover of a magnetic domain wall (DW, 2D) into a magnetic vortex (1D). Simulations and experiments agree quantitatively that DWs collapse into vortices at a critical length of a few tens of nanometers, which reveals a short-ranged attractive force between the two ends of a DW. Beyond physics aesthetics, our investigation should prove useful when analyzing the increasing number of experiments dealing with the behavior of domain walls and vortices under the effect of pulsed magnetic fields or spin-polarized currents, which undergo complex variations of shape and length during their dynamics. This includes the case of, e.g., the vortex state, where a domain wall dynamically replaces the vortex [30], or the multiplication of vortices or transformation of the type of domain wall in magnetic stripes [31,32].

*Present address: CEMES, 29 rue Jeanne Marvig, BP 94347, 31055 Toulouse Cedex 4, France.

†Corresponding author.

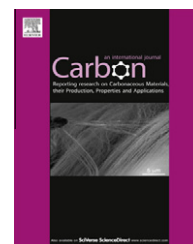
Olivier.Fruchart@grenoble.cnrs.fr

- [1] N. D. Mermin and H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
 [2] P. Pouloupoulos and K. Baberschke, *J. Phys. Condens. Matter* **11**, 9495 (1999).
 [3] A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic Domains. The Analysis of Magnetic Microstructures* (Springer, Berlin, 1999).

- [4] W. Döring, *J. Appl. Phys.* **39**, 1006 (1968).
 [5] A. S. Arrott and T. L. Templeton, *Physica (Amsterdam)* **233B**, 259 (1997).
 [6] A. Thiaville, J. M. García, R. Dittrich, J. Miltat, and T. Schrefl, *Phys. Rev. B* **67**, 094410 (2003).
 [7] H. Zocher, *Faraday Soc.* **29**, 945 (1933).
 [8] F. Brochard, *J. Phys.* **33**, 607 (1972).
 [9] P. G. de Gennes, *The Physics of Liquid Crystals Int. Series Monographs* 83 (Oxford Science Publications, Oxford, 1974).
 [10] C. Blanc, D. Svensek, S. Zumer, and M. Nobili, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 097802 (2005).
 [11] J. Grollier, P. Boulenc, V. Cros, A. Hamzic, A. Vaurès, A. Fert, and G. Faini, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 509 (2003).
 [12] T. Okuno, K. Shiget, T. Ono, K. Mibu, and T. Shinjo, *J. Magn. Magn. Mater.* **240**, 1 (2002).
 [13] B. Van Waeyenberge, A. Puzic, H. Stoll, K. W. Chou, T. Tylliszczak, R. Hertel, M. Fähnle, H. Brückl, K. Rott, G. Reiss, I. Neudecker, D. Weiss, C. H. Back, and G. Schütz, *Nature (London)* **444**, 461 (2006).
 [14] R. Hertel, S. Gliga, M. Fähnle, and C. M. Schneider, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 117201 (2007).
 [15] F. Cheynis, A. Masseboeuf, O. Fruchart, N. Rougemaille, J. C. Toussaint, R. Belkhou, P. Bayle-Guillemaud, and A. Marty, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 107201 (2009).
 [16] J.-G. Zhu, Y. Zheng, and G. A. Prinz, *J. Appl. Phys.* **87**, 6668 (2000).
 [17] D. A. Allwood, G. Xiong, C. C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, and R. P. Cowburn, *Science* **309**, 1688 (2005).
 [18] K.-J. Kim, J.-C. Lee, S.-M. Ahn, K.-S. Lee, C.-W. Lee, Y. J. Cho, S. Seo, K.-H. Shin, S.-B. Choe, and H.-W. Lee, *Nature (London)* **458**, 740 (2009).
 [19] P. O. Jubert, J. C. Toussaint, O. Fruchart, C. Meyer, and Y. Samson, *Europhys. Lett.* **63**, 132 (2003).
 [20] A. S. Arrott, B. Heinrich, and A. Aharoni, *IEEE Trans. Magn.* **15**, 1228 (1979).
 [21] R. Hertel and H. Kronmüller, *Phys. Rev. B* **60**, 7366 (1999).
 [22] J. C. Toussaint, A. Marty, N. Vukadinovic, J. Ben Youssef, and M. Labrune, *Comput. Mater. Sci.* **24**, 175 (2002).
 [23] E. Kritsikis, J. C. Toussaint, O. Fruchart, and L. D. Buda-Prejbeanu (to be published).
 [24] O. Fruchart *et al.* (unpublished).
 [25] O. Fruchart, M. Eleoui, P. O. Jubert, P. David, V. Santonacci, F. Cheynis, B. Borca, M. Hasegawa, and C. Meyer, *J. Phys. Condens. Matter* **19**, 053001 (2007).
 [26] J. N. Chapman, *J. Phys. D* **17**, 623 (1984).
 [27] A. Hubert, *Phys. Status Solidi* **32**, 519 (1969).
 [28] D. Li, C. Yu, J. Pearson, and S. D. Bader, *Phys. Rev. B* **66**, 020404(R) (2002).
 [29] H. A. M. van den Berg, *J. Magn. Magn. Mater.* **44**, 207 (1984).
 [30] D. H. Kim, B. L. Mesler, E. Anderson, P. Fischer, J.-H. Moon, and K. J. Lee (2010) under review.
 [31] Y. Nakatani, A. Thiaville, and J. Miltat, *Nature Mater.* **2**, 521 (2003).
 [32] M. Kläui, M. Laufenberg, L. Heyne, D. Backes, U. Rüdiger, C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, L. J. Heyderman, S. Cherifi, A. Locatelli, T. O. Mentis, and L. Aba, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 232507 (2006).

Available at www.sciencedirect.com

SciVerse ScienceDirect

journal homepage: www.elsevier.com/locate/carbon

New carbon cone nanotip for use in a highly coherent cold field emission electron microscope

Florent Houdellier ^{*}, Aurélien Masseboeuf, Marc Monthieux, Martin J. Hÿtch

CEMES-CNRS, 29 rue Jeanne Marvig, BP 94347, Toulouse, Cedex 4, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 3 November 2011

Accepted 6 January 2012

Available online 13 January 2012

ABSTRACT

A new cathode for cold-field emission gun using a pyrolytic carbon-cone supported onto a carbon nanotube as the electron emitting tip has been developed. This tip was mounted in a TEM using a FIB based method, and the brightness measured under real operating conditions is five times better than obtained with a standard tungsten tip. Its use overcomes the many technical difficulties which have dogged the use of carbon nanotube-based tips as proposed replacements for tungsten tips. The resulting properties of the final CFEG exhibit a very good energy spread of 0.32 eV, a reduced brightness of $1.6 \times 10^9 \text{ A m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ V}^{-1}$ and a very good long-term stability with a current damping less than 16% per hour.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The recent spectacular improvements in instrumentation for transmission electron microscopy, notably aberration correction [1–3], have highlighted the relative lack in progress of an essential part of the microscope column, i.e. the electron gun itself. The highest brightness electron guns are based on cold-field emission from tungsten tips, a technology strongly improved from the electron optics and vacuum point of view but still using the same cathode materials [4]. Until now, most of the latest generation electron microscopes are equipped with so-called Schottky field emission guns based on thermally field-assisted emission which are generally brightness-limited by coulomb interactions [5,6]. The development of a cold field-emission electron source with higher brightness and coherence would benefit electron microscopy techniques across the board from high-resolution imaging [7] and atomic-resolution electron-energy-loss spectroscopy (EELS) [8], to electron holography [9,10].

Indeed, electron sources for electron microscopy can be divided into two main families known as thermionic and field emission [5]. A thermionic gun uses a current-induced thermal excitation to allow electrons to pass over the energy barrier be-

tween the metal tip (usually a LaB₆ single crystal) and the vacuum. The high emission currents are due to the fact that electrons are emitted from a large area of the tip. This makes these guns suitable for a wide range of conventional electron microscopy techniques. However, spatial and temporal coherence is poor due to the large virtual source size and the wide energy spread of the emitted electrons. This prevents their use as a source for electron holography or high-resolution electron energy loss spectroscopy. Field-emission guns (FEG) overcome these limitations by significantly decreasing the emission area (to about 50 nm diameter) and increasing the spatial coherence of the beam. Electrons are extracted by a strong electric field which enables them to tunnel through the energy barrier. However despite very good coherence (both spatial and temporal), the current decreases continuously during emission due to the adsorption of atoms (from the residual species in the vacuum or from degassing of the anode) onto the emitter surface. The surface can be cleaned by applying a burst of heat to the tip (called “flashing”), which can perturb experiments. Hence, FEGs are foremost restricted to scanning TEM instruments dedicated to electron spectroscopy and commonly named CFEG (for cold field emission gun). Schottky emitters are a hybrid combination of both above-described families more like

^{*} Corresponding author: Fax: +33 562257999.

E-mail address: florent.houdellier@cemes.fr (F. Houdellier).

0008-6223/\$ - see front matter © 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

doi:10.1016/j.carbon.2012.01.023

a field-assisted thermionic emission than a genuine field emission [6]. A reasonable compromise is thus obtained between spatial coherence and beam current leading to a brightness which is higher than thermionic emitters but lower than cold-field emission. This compromise solution avoids the main disadvantages of a cold-field emitter and most electron microscopes which need a high brightness electron beam are equipped with such a gun. However, CFEGs remain superior for advanced spectroscopy as well as for specific TEM modes such as electron holography. Hence, pushed by the strong customer's demand to overcome the difficulties inherent to CFEGs, new vacuum and gun technologies are currently proposed by various TEM companies (namely Nion, Jeol and Hitachi) which allow flashing the tip not more than once a day or enable operators to clean the tip during the experiments without having to change the operating conditions, i.e. the flashing may be made under high voltage environment. However, in all nowadays new CFEG technologies on the market, the cathode material, made of tungsten, remains unchanged. The most promising candidates for replacing the tungsten tips used in cold-field emission are carbon nanotubes (CNTs) [11], which were demonstrated some years ago to be able of brightness one order of magnitude higher than tungsten tip as measured in an optical bench [12]. However, since then, such sources have not been successfully integrated in a high-voltage transmission electron microscope because of technical difficulties. Only low-accelerating voltage Scanning Electron Microscopes (SEM) with modified Schottky guns were investigated [13,14]. The nanotube needs to be correctly mounted onto the filament which includes the laborious task of selecting a CNT which is suitably straight, aligning the selected CNT in the right direction for emission, and fixing the CNT so as to insure a good electrical contact. Reproducibility is poor due to the difficulty of the mounting operation [15] and the variation in field-emission characteristics and conductivity of the CNTs [16]. Growing a single, well-aligned CNT at the right place is tricky as well. A review of various procedures for such delicate mounting can be found elsewhere [17]. Furthermore, nanotubes are long and thin making them prone to vibrate [18], a feature which is able to provoke their breakage during emission [19] and a loss of spatial coherence for the electron beam extracted. The nanotube low diameter also limits the electron current that can be driven through the whole length of the tube, due to Joule heating [20]. Because of all these points, the efficiency of CNTs for cold-field emission in a high-voltage TEM has actually not been demonstrated so far.

Here we present the development of a new cathode for cold-field emission gun using a carbon nanotube-supported pyrolytic carbon cone [21–24], as a superior alternative to both standard tungsten tips and carbon nanotube tips. The relatively easy procedure to mount the carbon tip as the emitting tip is described, and the superior performances of the tip, as investigated both in a test-bench and in a TEM, are described a well.

2. Experimental

The carbon cones used in the study are prepared by a so-called “time-of-flight chemical vapor deposition” process which consists in depositing pyrolytic carbon onto previously grown car-

bon nanotubes used as substrates [21]. The overall morphology of the carbon objects used in the study is actually more complex than a mere carbon cone, as it can be precisely described as a carbon-nanotube-supported pyrolytic carbon deposit which includes a short microfiber segment with rough surface and two opposed cones with smooth surface which terminate the short fiber segment ends (Fig. 1). However, the objects will be referred as “carbon cones” throughout the paper for practical use. Synthesis conditions and formation mechanisms were extensively described earlier as well as the various cone-bearing carbon morphologies which are able to be prepared by this process [22–24], including those used here. Briefly, the formation of the cone morphology is assumed to require the transient formation of specific hydrocarbon-rich droplets in the gas phase, whose average size with respect to that of the nanotube diameter should be such that they make possible the conditions for partial wetting [24].

A tungsten tip is first prepared using a standard procedure, namely the micro-welding of a [310]-oriented tungsten wire on a regular V-shape TEM tungsten filament. The tip of the tungsten wire is then electrochemically etched in a KOH solution. The resulting tungsten support can be illustrated by what is shown on right-hand in the inset of Fig. 2D.

Afterwards, the various steps for mounting a carbon cone onto the home-made [310]-oriented tungsten tip are carried-out in a dual Focused Ion Beam/FEG Scanning Electron Microscope (FIB/SEM) fitted with a nano-manipulator, as summarized in Fig. 2.

A suitable carbon cone (Fig. 2A) is selected under SEM according to the proper alignment of the cone axis with respect to the microfiber portion axis. It is then lifted from the surface using micro-tweezers after cutting it from its base using a Ga ion beam (see Fig. 2C). The apex of the tungsten tip formerly prepared is also truncated by means of the Ga ion beam (Fig. 2B). The cut face of the carbon microfiber segment bearing the cone is then welded by W ion beam induced-deposition (from a W precursor, namely $W(CO)_6$) to the truncated tungsten tip apex (Fig. 2D). An original CFEG shape is thus obtained displaying an apex radius below 5 nm. A particular attention is paid to protect the carbon cone from parasitic deposition or ion irradiation of the cone by tilting the stage by 20° . This enables a protection of the cone from the ion beam by the tweezers during the whole procedure (as can be seen on Fig. 2C). Indeed, TEM investigations of the carbon tip after mounting provided images similar to that in Fig. 3A taken on an as-grown cone, showing that the carbon cone structure was unaffected by any of the in-FIB irradiation steps. The whole mounting procedure is robust, reproducible, and takes only 2 h (including 30 min for preparing the supporting tungsten tip). It is worth noting that the same positioning, aligning, and fixing steps are required when attempting to use a pristine single carbon nanotube as emitting tip, but they are much facilitated by the specific multi-part morphology used here. Indeed, thanks to the short microfiber body, the object can easily be grabbed and welded, and thanks to the cone-microfiber self-alignment, the carbon cone can also be suitably positioned in spite of the nanometer size of the cone tip that will be the emitting part.

To fully characterize the emission properties of the new tip, two emission test benches were used. One is a home-made ultra-high vacuum (UHV) point projection microscope,

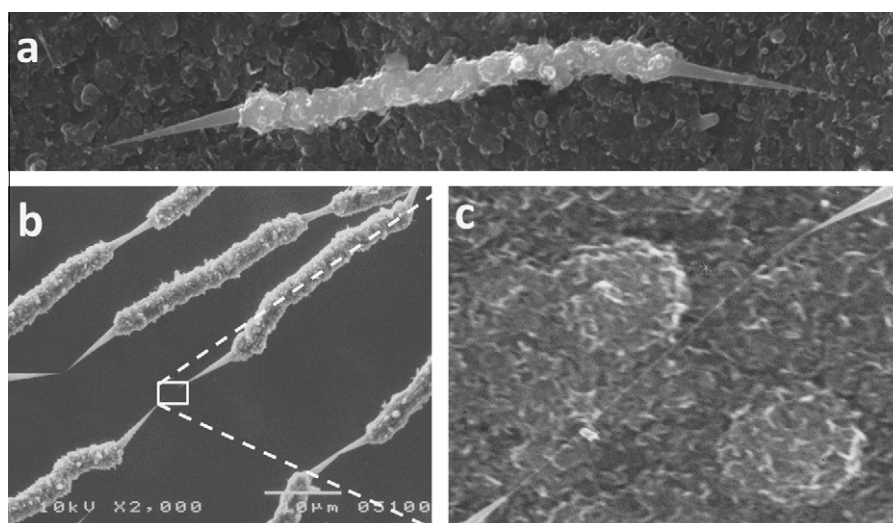


Fig. 1 – Scanning electron microscopy images. (a) Typical example of the carbon morphologies used in this work. The diameter of the short microfiber with rough surface between the two opposed cones is about 1 μm . (b) Example of similar morphologies also obtained, yet more thickened (the diameter of the short microfibers is about 4 μm). (c) High magnification of the area framed in (b). A non-thickened part of the supporting carbon nanotube (whose diameter is ~ 5 nm) shows up between two cone tips facing each other from two successive pyrolytic-carbon morphologies.

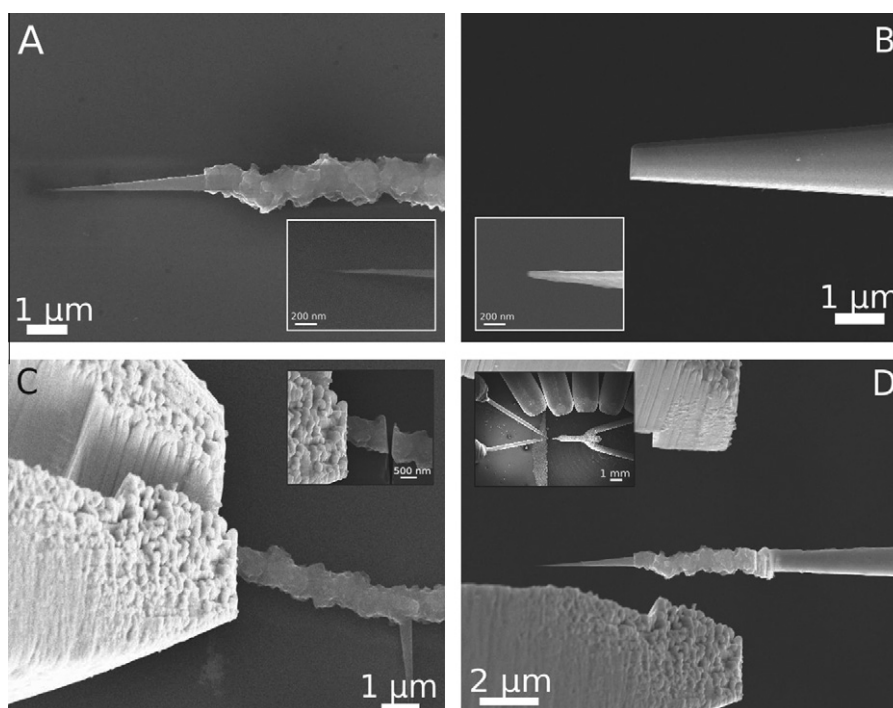


Fig. 2 – Mounting procedure for the carbon cone tip. (A) View of part of the starting carbon object (similar to that in Fig. 1a). The inset shows the apex radius of the carbon cone, below 10 nm. (B) View of the tungsten tip after being truncated using the FIB. The inset shows the original apex of the tip. (C) The clamp of the carbon cone made with the tweezers at a 20° tilt of the stage enables a protection of the tip during electron and ion imaging and ablation. The inset shows the next step when the carbon microfiber is cut using the FIB. (D) Resulting new tip after welding the carbon microfiber to the tungsten tip. The inset displays the whole set-up inside the dual beam (tweezers on the left, the new tungsten-supported carbon CFEG tip on the right, gas injection nozzles on top).

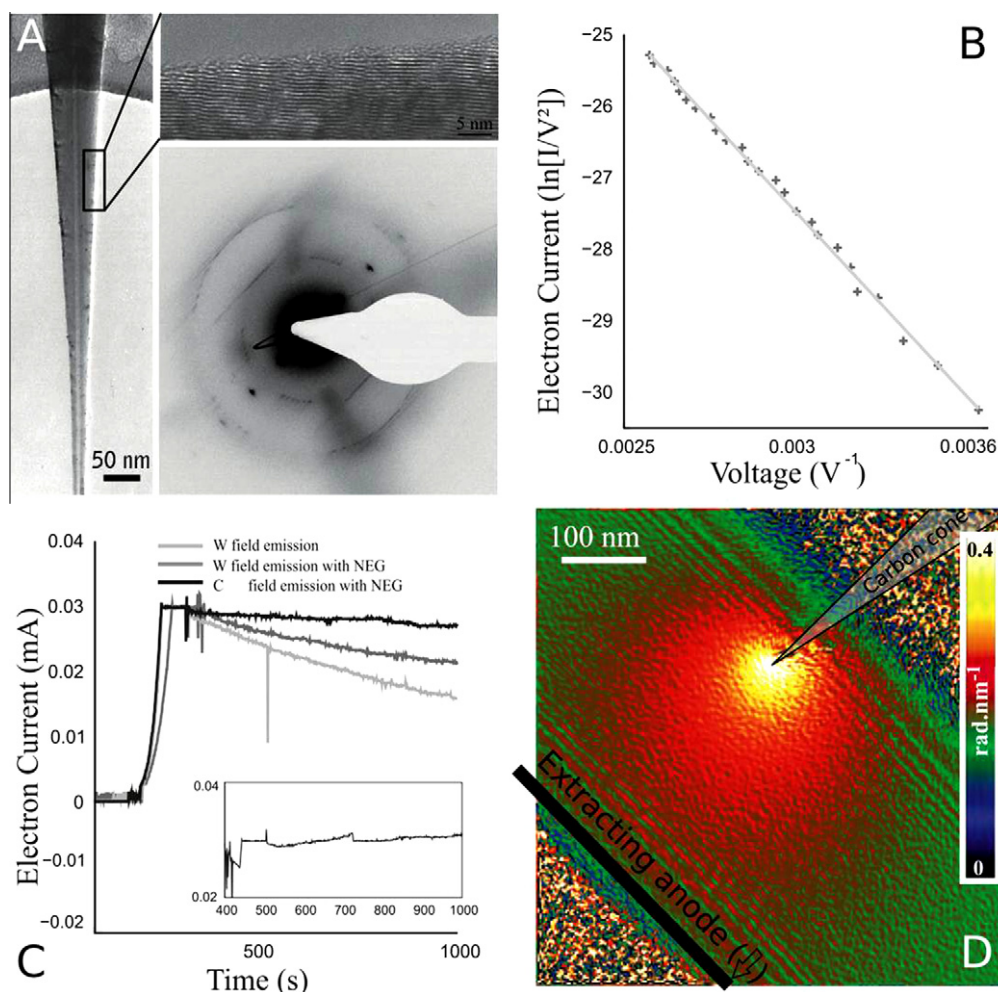


Fig. 3 – Characteristics of the carbon cone. (A) Medium (left) and high (top right) resolution TEM images of a carbon cone. The inner cavity of the supporting nanotube is seen. The carbon cone is made from graphenes with good nanotexture displayed concentrically as in MWCNTs, with the difference that the larger the graphene cylinder, the shorter its length. The bottom right image displays the associated diffraction pattern confirming that the cone is made of concentric graphene cylinders with perfect orientation with respect to the cone axis. See also [23]. (B) Fowler-Nordheim plot of the emission obtained inside the point projection chamber. (C) Emission stability for three configurations in the dedicated microscope: with a commercial tungsten tip; same tip after adding the NEG pumping system; with the carbon cone tip (and NEG pumping system). The inset displays emission for the carbon cone where small increases of current are observed. The inset time scale is in minutes (see text). (D) Holographic measurement during in situ field-emission. The positions of both the carbon cone tip and of the extracting anode have been schematically reported on the image. The map displayed corresponds to the derivative of the hologram phase and is directly proportional to the electric field modulus around the tip.

in which the vacuum was optimized with the use of a special Non-Evaporated Getter (NEG) pumping system [25] in addition to the regular ion getter pump, enabling to reach vacuum beyond the detection limit of the gauge used, in the range of 10^{-10} Pa. Indeed, the high pumping speed of the NEG pump can reduce the tip contamination due to anode degassing. The gun assembly was designed based on the ceramics and extracting anode of a former Philips EM400 cold-FEG module. A special degassing device for the extracting anode was designed using four halogen lamps placed around the gun assembly. Electrons are detected using a Faraday cup and a special trans-impedance electronic circuit is used to convert the small current detected into a voltage signal directly captured by a National Instrument acquisition card. The total

acceleration of the emitted electrons is then given by the extraction voltage. The signal is directly processed by a home-made Labview-based software.

The second bench used was a 20-year old Hitachi HF2000 FE-TEM, in which the new tip was mounted to study the emission properties under high voltage environment. In order to achieve the correct vacuum condition, as for the UHV point projection microscope, the initial HF2000 vacuum circuit was modified by adding a NEG pump. The entire system was baked to achieve a suitable vacuum, better than 2×10^{-9} Pa. As shown in Fig. 3C, such high vacuum drastically improves the emission properties when studying the slope of the current emitted by a standard tungsten tip. Furthermore, the vacuum below the gun valve was also

improved to avoid degassing when opening the valve. However, the old electron optics technology used around the tip was left unchanged due to its difficult access. A Faraday cup was also installed in the beam stop position to measure the beam current, and a home-made $2k \times 2k$ camera was mounted on a GIF200 (Gatan Image Filter) to capture the Fresnel fringe images, the electron holograms, and the zero-loss peak shape. The conditions to perform the Fresnel fringe patterns used to study the coherence properties of the beam were set with an emission current of $8 \mu\text{A}$ inside the gun, an aperture size of $50 \mu\text{m}$ and an exposure time of 1 s. It is worth noting that the lens currents were left unchanged for both experiments (i.e. with the tungsten tip and the carbon cone tip). To generate the electron holograms, a rotatable Moellenstedt biprism was positioned in the selected aperture plane of the objective lens. The zero-loss has been recorded using the GIF200 operated in the spectrometry mode with the smallest energy dispersion, a spectrometer entrance aperture of 0.6 mm and a condenser aperture of $50 \mu\text{m}$. This spectrum has been captured with 0.3 s of exposure time using the diffraction mode of the TEM with a 0.2 m camera length and the incoming electron beam was set to $4 \mu\text{A}$ inside the gun at 200 keV accelerating voltage.

3. Field emission properties of the carbon-cone tip

As a consequence of our design, the current measured is that produced by the whole gun assembly. We were thus able to characterize the new tip in terms of field-emission properties and current stability, starting with a Fowler–Nordheim (FN) plot. The FN theory was formerly developed for planar emitters [26] but was extended to CNT emitters afterwards [27]. The FN plot (Fig. 3B) enables to recover the field-enhancement factor β of the emitter which locally increases the macroscopic electric field mainly due to the shape of the emitter. It can be expressed without unit [28] or in relation with the anode–cathode distance [29,30]. Assuming a work function of $\phi = 5.0 \pm 0.1 \text{ eV}$ [29] a field enhancement factor of 15,000 is extracted from the FN plot. This value is much higher than for the standard tungsten tip and the extraction voltage is therefore much lower (400 V in this case). This is in the range of the giant field-enhancement factor recently reported [31,32]. It could be explained considering the multistage form of our emitter [33]. This value was confirmed by in-situ off-axis electron holography measurements (Fig. 3D) carried-out in a FEI TECNAI F20 TEM using a Nanofactory Instruments field-emission-dedicated double-tilt holder operated in

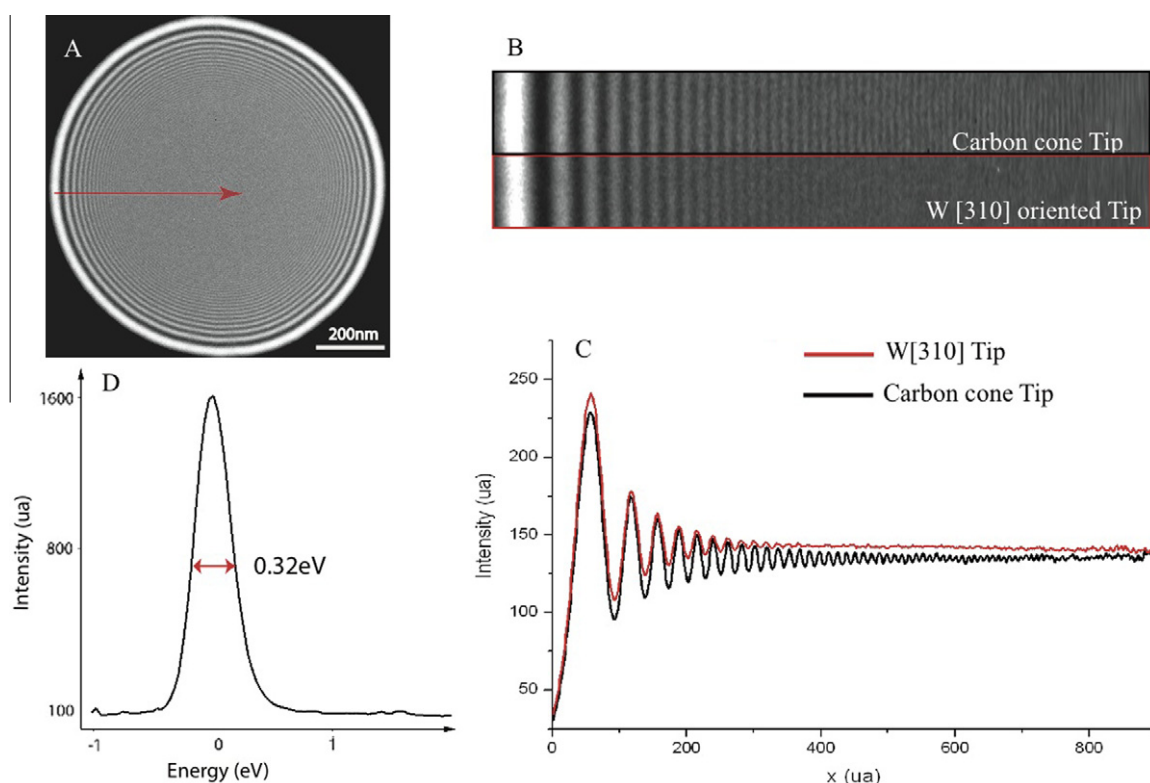


Fig. 4 – Spatial coherence and spectral properties obtained from the carbon cone mounted as the emitter in our CFEG TEM. (A) Fresnel fringes obtained from a defocused condenser aperture. (B) Comparison of the Fresnel fringe extension (angular sum) obtained with a commercial [310]-oriented tungsten tip and the new carbon cone source. (C) Fresnel fringe contrast averaged over the total angle of the condenser aperture obtained with the tungsten source (red) and the carbon cone source (black). (D) Energy spread obtained from the FWHM of the zero-loss peak of the electron energy loss spectrum obtained with the carbon nanocone electron source. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this paper.)

Lorentz mode to map the electric field around the tip during emission using usual phase analysis [34]. A mean value of $2 \times 10^9 \text{ V m}^{-1}$ leading to a field-enhancement factor of 13,000, was obtained which confirms the Fowler–Nordheim results. Fig. 3D also shows that the electrons are emitted from the very tip of the carbon-cone emitter.

4. Improving the spatial coherence of a transmission electron microscope

Electrons were extracted from the carbon tip to reach an intensity of $30 \mu\text{A}$ and accelerated at 200 keV. As shown in the UHV point projection microscope, with the carbon nanocone tip, the strong field-enhancement factor lowers the extraction voltage needed to achieve the same emitted current as with a tungsten tip (1500 V in our case). Therefore, the ratio R between the extracting voltage and the focusing gun lens voltage was carefully adjusted for the carbon-cone tip to keep the maximum current at the end of the accelerating stage. In both cases (tungsten and carbon-cone) a distance of 7 mm was set from the tip to the extracting anode. Contrarily to a regular (tungsten-based) CFEG the current was extremely stable as shown in Fig. 3C. Moreover, it was found to slightly increase over several hours of emission (inset of Fig. 3C), and the extraction voltage needed to be lowered after 1 day of use. This side-effect was prevented by flashing the tip once before starting emitting in order to clean it from any adsorbed species, which is still by far much more convenient than flashing the tungsten tip every hour as with standard tungsten cathodes. However, even with the NEG pump, the high frequency emission noise was found in the same range as for the standard tungsten-tip, i.e. slightly higher than 1%. This is believed to be a consequence of the old overall gun technology (extracting anode materials, tip relatively far from the pumping system linked by small holes in the extracting and focusing anodes, ...) which was the same for both the tungsten-tip and carbon-cone tip experiments. The reduced brightness of the carbon gun was measured with a Faraday cup which is the most accepted method [35]. A steady value of $1.6 \times 10^9 \text{ A m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ V}^{-1}$ was found. The conditions used to determine the brightness were carefully chosen to minimize the diffraction effects and condenser lens aberrations as detailed in [35]. Thus, the current was measured equal to 2.5 nA for a 0.3 nm probe size obtained in convergent beam mode with an opening angle of 6 mrad. Using the same method, a reduced brightness of $5 \times 10^8 \text{ A m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ V}^{-1}$ only was obtained using the same gun assembly and operated with the standard tungsten tip. This clearly confirms the highly beneficial contribution of the carbon nanocone onto the reduced brightness of the overall gun assembly. This has also to be compared with values such as $1 \times 10^8 \text{ A m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ V}^{-1}$ given for the most recent Schottky sources [36]. It is furthermore in the same range as what was expected for nanotube emitters [29]. In order to compare the coherence properties of the new tip with that of a tungsten tip, Fresnel fringes and electron holograms were recorded in the same conditions with the two tips. The use of off-axis electron holography to unambiguously compare the spatial coherence of the two sources is not straightforward due to the multiple perturba-

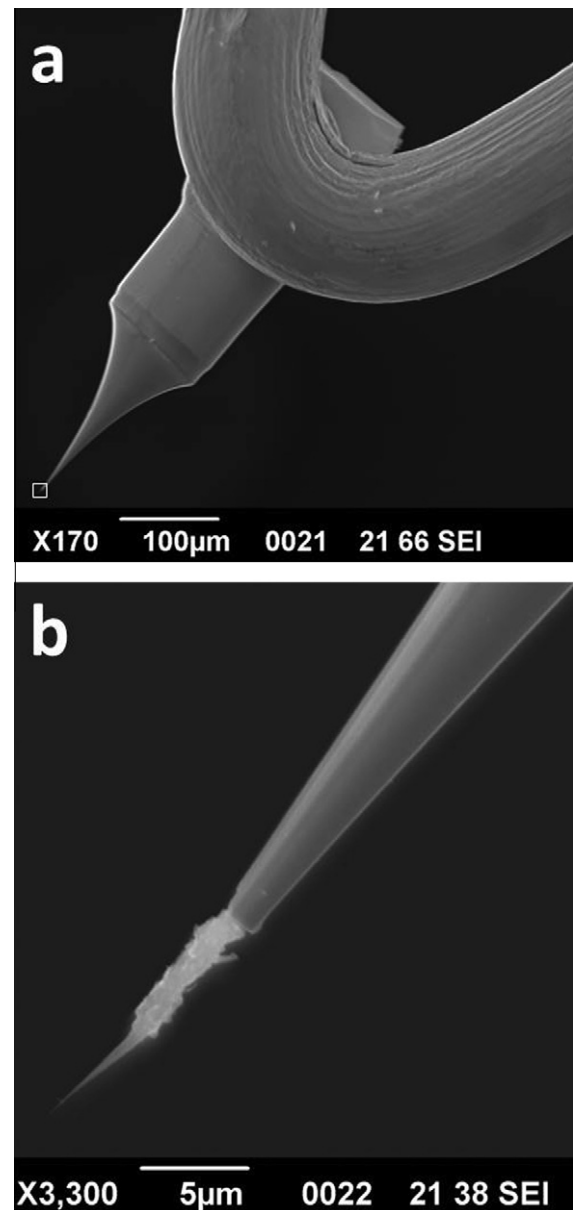


Fig. 5 – SEM images of the new tip after 18 months of use. (a) Overall view mostly showing the tungsten support, including the V-shaped tungsten wire with the etched tungsten tip welded to it. (b) Close view of the framed part of the image in (a) showing the carbon-cone tip still attached to the truncated tungsten tip support.

tions that can induce a contrast damping. The Fresnel fringes of a defocused condenser aperture were then also recorded to compare the coherence degree of each source. The result is displayed in Fig. 4. As explained in the Section 2, the conditions remained strictly identical for the two experiments.

It clearly appears that the contrast of the Fresnel fringes is highly improved using the new carbon tip especially for distances far from the aperture edge. This unambiguous proof of the enhanced spatial coherence of the cold-field emission provided by the carbon cone opens many perspectives especially in the field of electron holography. Such a high bright-

ness, high coherence CFEG source was used to perform standard off-axis electron holography experiments similar to that reported in [10]. We measured a contrast in electron holography of 54% with 100 V applied to the biprism wire compared to 40% obtained for this range of biprism voltage with Schottky sources [37]. These values are remarkable since the whole TEM equipment is over 20 years old and placed in a non-optimized (i.e. not free of parasitic fields) room.

The energy spread was also determined to be 0.32 eV using the full width at half maximum (FWHM) of the zero-loss peak (Fig. 4D). This very good dispersion is in the same range as the best CFEG currently available [38]. Last but not least, our carbon tip has demonstrated to be fairly robust, with a life time now superior to 18 months (Fig. 5), while its performances are still maintained.

5. Conclusions

We have demonstrated that significant improvements of FEG-TEM performances (EELS, HRTEM, and holography) can be obtained by replacing the regular tungsten tip by a carbon cone tip prepared using specific CVD conditions. In particular, electron holography experiments could be performed with a much better signal over noise ratio in the reconstructed phase. As measured from the reduced brightness, field enhancement factor, current stability, energy spread, and spatial coherence, this new electron source technology makes a jump in CFEG performances with respect to tungsten-based emitters, in the same extent or better than carbon nanotubes were claimed to do. However, the specific morphology of the carbon-cone-bearing object used, which can be precisely described as “a carbon-nanotube-supported pyrolytic carbon deposit which includes a short microfiber segment with rough surface and two opposed cones with smooth surface which terminate the short fiber segment ends”, overcomes the difficulties inherent to the use of pristine single carbon nanotubes, and make possible the actual technological transfer of such a new emitting carbon tip into TEMs. Hence, it brings out a real and robust application of carbon nanotube-based materials. Such a cathode associated with the latest generation of gun and TEM technologies should enable new developments with advanced electron interferometry and spectroscopy studies. Promising interferometry experiments are currently performed in our laboratory, exploiting the advantages brought by this new carbon-cone tip-equipped cold-field emission gun.

Acknowledgments

This work was supported by the European Union through the Project ESTEEM (Enabling Science and Technology through European Electron Microscopy, IP3: 0260019) and the French National Agency for Research (ANR) in the frame of its Program in Nanosciences and Nanotechnologies (HDSTRAIN Project No. ANR-08-NANO-0-32). Pierre Stadelmann and Cecile Hebert from EPFL are warmly thanked for giving their HF2000 column to the CEMES. The authors would also like to thank Philippe Salles for help with the FIB preparation and Etienne Snoeck for critical rereading of the manuscript.

REFERENCES

- [1] Haider M, Uhlemann S, Schwan E, Rose H, Kabius B, Urban K. Electron microscopy image enhanced. *Nature* 1998;392:768–9.
- [2] Krivanek OL, Dellby N, Lupini AR. Towards sub-angstrom electron beams. *Ultramicroscopy* 1999;78:1–11.
- [3] Zach J. Chromatic correction: a revolution in electron microscopy. *Philos Trans R Soc A* 2009;367:3699–707.
- [4] Crewe AV, Eggenberger DN, Wall J, Welter LM. Electron gun using a field emission source. *Rev Sci Instrum* 1968;39:576–83.
- [5] Hawkes PW, Kasper E. Principles of electron optics: applied geometrical optics. Academic Press; 1989.
- [6] Franssen MJ. Experimental evaluation of the extended Schottky model for ZrO/W electron emission. *J Vac Sci Technol B: Microelectron Nanometer Struct* 1998;16(4):2063–72.
- [7] Batson PE, Dellby N, Krivanek OL. Sub-angstrom resolution using aberration-corrected electron optics. *Nature* 2002;418:617–20.
- [8] Muller DA, Kourkoutis LF, Murfitt M, Song JH, Hwang HY, Silcox J, et al. Atomic-scale chemical imaging of composition and bonding by aberration-corrected microscopy. *Science* 2008;319:1073–6.
- [9] Lichte H, Geiger D, Linck M. Off-axis electron holography in an aberration-corrected transmission electron microscope. *Philos Trans R Soc A* 2009;367:3773–93.
- [10] Hytch MJ, Houdellier F, Hue F, Snoeck E. Nanoscale holographic interferometry for strain measurements in electronic devices. *Nature* 2008;453:1086–9.
- [11] Xu N, Huq S. Novel cold cathode materials and applications. *Mater Sci Eng R* 2005;48:47–189.
- [12] de Jonge N, Lamy Y, Schoots K, Oosterkamp TH. High brightness electron beam from a multi-walled carbon nanotube. *Nature* 2002;420:393–5.
- [13] Kruit P, Bezuijen M, Barth JE. Source brightness and useful beam current of carbon nanotubes and other very small emitters. *J Appl Phys* 2006;99:024315–22.
- [14] de Jonge N. Carbon nanotube electron sources for electron microscopes. *Advances in imaging and electron physics*, vol. 156. Elsevier; 2009. p. 203–33 [chapter 3].
- [15] de Jonge N, Lamy Y, Kaiser M. Controlled mounting of individual multiwalled carbon nanotubes on support tips. *Nano Lett* 2003;3:1621–4.
- [16] Kim C-D, Jang H-S, Lee S-Y, Lee H-R, Roh Y-S, Rhee I-S, et al. In situ characterization of the field-emission behavior of individual carbon nanotubes. *Nanotechnology* 2006;17:5180–4.
- [17] Ribaya BP, Leung J, Brown P, Rahman M, Nguyen CV. A study on the mechanical and electrical reliability of individual carbon nanotube field emission cathodes. *Nanotechnology* 2008;19:185201–9.
- [18] Saito Y, Seko K, Kinoshita J-I. Dynamic behavior of carbon nanotube field emitters observed by in situ transmission electron microscopy. *Diamond Relat Mater* 2005;14:1843–7.
- [19] Bonard J, Klinke C, Dean K, Coll B. Degradation and failure of carbon nanotube field emitters. *Phys Rev B* 2003;67:115406–16.
- [20] Vincent P, Purcell ST, Journet C, Binh VT. Modelization of resistive heating of carbon nanotubes during field emission. *Phys Rev B* 2002;66:075406–11.
- [21] Jacobsen RL, Monthieux M. Carbon beads with protruding cones. *Nature* 1997;385:211–2.
- [22] Allouche H, Monthieux M, Jacobsen RL. Chemical vapor deposition of pyrolytic carbon on carbon nanotubes: Part I. Synthesis and morphology. *Carbon* 2003;41:2897–912.

- [23] Allouche H, Monthieux M. Chemical vapor deposition of pyrolytic carbon on carbon nanotubes: Part II. Texture and structure. *Carbon* 2005;43:1265–78.
- [24] Monthieux M, Allouche H, Jacobsen R. Chemical vapor deposition of pyrolytic carbon on carbon nanotubes: Part III. Formation mechanisms. *Carbon* 2006;44:3183–94.
- [25] Audi M, Dolcino L, Doni F, Ferrario B. A new ultrahigh vacuum combination pump. *J Vac Sci Technol A* 1987;5:2587–90.
- [26] Fowler RH, Nordheim L. Electron emission in intense electric fields. *Proc R Soc London Ser A* 1928;119:173–81.
- [27] Liang SD, Chen L. Generalized Fowler–Nordheim theory of field emission of carbon nanotubes. *Phys Rev Lett* 2008;101:027602–6.
- [28] Bonard J, Croci M, Arfaoui I, Noury O, Sarangi D, Châtelain A. Can we reliably estimate the emission field and field enhancement factor of carbon nanotube film field emitters. *Diamond Relat Mater* 2002;11:763–8.
- [29] de Jonge N, Allieux M, Oostveen JT, Teo KBK, Milne WI. Optical performance of carbon-nanotube electron sources. *Phys Rev Lett* 2005;94:186807–11.
- [30] Smith RC, Forrest RD, Carey JD, Hsu WK, Silva SRP. Interpretation of enhancement factor in non-planar field emitters. *Appl Phys Lett* 2005;87:013111–4.
- [31] Chen G, Shin DH, Roth S, Lee CJ. Field emission characteristics of point emitters fabricated by a multiwalled carbon nanotube yarn. *Nanotechnology* 2009;20:315201–6.
- [32] Kim HJ, Bae MJ, Kim YC, Cho ES, Sohn YC, Kim DY, et al. Growth of carbon nanotube field emitters on single strand carbon fiber: a linear electron source. *Nanotechnology* 2011;22:095602–8.
- [33] Huang JY, Kempa K, Jo SH, Chen S, Ren ZF. Giant field enhancement at carbon nanotube tips induced by multistage effect. *Appl Phys Lett* 2005;87:053110–3.
- [34] Cumings J, Zettl A, McCartney MR, Spence JCH. Electron holography of field-emitting carbon nanotubes. *Phys Rev Lett* 2002;88:056804–8.
- [35] Fransen MJ, Overwijk MHF, Kruit P. Brightness measurements of a ZrO/W Schottky electron emitter in a transmission electron microscope. *Appl Surf Sci* 1999;146:357–62.
- [36] Van Veen AHV, Hagen CW, Bart JE, Kruit P. Reduced brightness of the ZrO/W Schottky electron emitter. *J Vac Sci Technol B* 2001;19:2038–44.
- [37] Cooper D, Truche R, Rivallin P, Hartmann J, Laugier F, Bertin F, et al. Medium resolution off-axis electron holography with millivolt sensitivity. *Appl Phys Lett* 2007;91:143501–4.
- [38] Krivanek OL, Dellby N, Keyse RJ, Murfitt MF, Own CS, Szilagy ZS. Advances in aberration-corrected scanning transmission electron microscopy and electron energy-loss spectroscopy. *Aberration-corrected electron microscopy. Advances in imaging and electron physics*, vol. 153. Elsevier; 2008. p. 21–60 [chapter 3].



Determining the work function of a carbon-cone cold-field emitter by *in situ* electron holography



Ludvig de Knoop*, Florent Houdellier¹, Christophe Gatel², Aurélien Masseboeuf³, Marc Monthieux⁴, Martin Hÿtch⁵

CEMES-CNRS, Université de Toulouse, 29 rue Jeanne Marvig, 31055 Toulouse, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 30 September 2013

Received in revised form 2 March 2014

Accepted 2 March 2014

Available online 16 March 2014

Keywords:

In situ TEM

Field emission of carbon

Electron holography

Finite element modeling

ABSTRACT

Cold-field emission properties of carbon cone nanotips (CCnTs) have been studied *in situ* in the transmission electron microscope (TEM). The current as a function of voltage, $i(V)$, was measured and analyzed using the Fowler–Nordheim (F–N) equation. Off-axis electron holography was employed to map the electric field around the tip at the nanometer scale, and combined with finite element modeling, a quantitative value of the electric field has been obtained. For a tip-anode separation distance of 680 nm (measured with TEM) and a field emission onset voltage of 80 V, the local electric field was 2.55 V/nm. With this knowledge together with recorded $i(V)$ curves, a work function of 4.8 ± 0.3 eV for the CCnT was extracted using the F–N equation.

© 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Carbon nanotubes (CNT) (Iijima, 1991) are possible candidates for emitters in the next generation of cold-field emission guns (CFEG) (de Jonge, 2009; de Jonge et al., 2002; de Jonge and van Druuten, 2003). When compared with standard tungsten cold-field emitters, they have higher spatial coherence and brightness, improved emission stability and lower onset voltage and energy spread (de Jonge, 2009; Saito and Uemura, 2000). These properties could be valuable for applications like for example dark-field electron holography (Hÿtch et al., 2008), high-resolution electron energy loss spectroscopy (Yuge et al., 2012) or in monochromated scanning transmission electron microscopy (Krivanek et al., 2013). Despite these advantages, CNTs have never been put into practice for a number of reasons; of which the small diameter of CNTs make them difficult to handle (de Jonge et al., 2003; Ribaya et al., 2008) and due to its high aspect ratio regarding the shape, it is prone to vibrate (Saito et al., 2005).

A carbon cone nanotip (CCnT, see Fig. 1) (Jacobsen and Monthieux, 1997) has recently been developed to overcome these issues. Their wide base of several μm allows the tips to be mounted in a routine way within a focused ion beam (FIB) and the conical shape limits vibrations. The benefits of the CCnT with respect to a W-tip have been demonstrated in a working 200 kV CFEG transmission electron microscope (TEM, Hitachi HF2000) by Houdellier et al. (2012).

For electrons to escape a material, they need to overcome an energy-barrier called the work function ϕ (Hazra et al., 2011). In thermionic emission, an electron close to the Fermi level, that gains additional energy through thermal processes, equal to or greater than the work function, can leave the material. In electron field emission, the electrons instead pass through the barrier using the quantum mechanical tunneling effect. In the presence of a strong electric field, the barrier is reshaped and diminished until the electrons can tunnel through. A good knowledge of the work function is therefore necessary to understand the energy-addition needed for the electrons to be emitted.

For this, we have used an *in situ* TEM sample holder to apply a bias between a CCnT and an Au anode until the electrons started to tunnel through the energy barrier. The current can be recorded and analyzed using a Fowler–Nordheim (F–N) equation (Eq. (1)). We have also used electron holography to understand the electric field more locally around the tip. And, in order to quantitatively determine the electric field, we have compared these results with finite element method (FEM) modeling. Similar approaches have been used before (Cumings et al., 2002; He et al., 2013). Finally, by combining the F–N equation, electron holography and

* Corresponding author. Tel.: +33 5 67 52 43 66; fax: +33 5 62 25 79 99.

E-mail addresses: deknoop@cemes.fr (L. de Knoop), florent@cemes.fr (F. Houdellier), gatel@cemes.fr (C. Gatel), aurelien.masseboeuf@cemes.fr (A. Masseboeuf), marc.monthieux@cemes.fr (M. Monthieux), martin.hytch@cemes.fr (M. Hÿtch).

¹ Tel.: +33 5 62 25 78 80; fax: +33 5 62 25 79 99.

² Tel.: +33 5 67 52 43 49; fax: +33 5 62 25 79 99.

³ Tel.: +33 5 62 25 78 85; fax: +33 5 62 25 79 99.

⁴ Tel.: +33 5 62 25 78 86; fax: +33 5 62 25 79 99.

⁵ Tel.: +33 5 62 25 78 83; fax: +33 5 62 25 79 99.

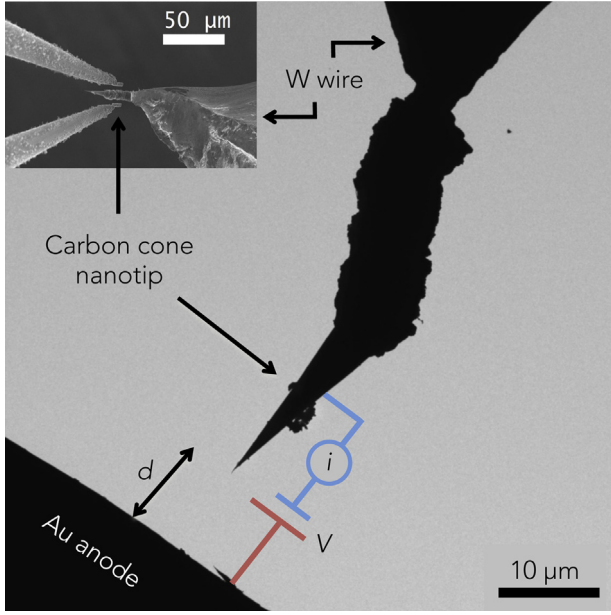


Fig. 1. TEM micrograph showing the Au-anode plate and the CCnT mounted on a W-tip. The Au anode was biased and the CCnT was connected to ground. The tip-anode separation distance, before the final approach has been made, is indicated by d . The inset shows a SEM image of the micro-tweezers that were used inside the FIB-SEM to mount the CCnT on a W-wire.

FEM, we have found an estimate of the work function of the CCnT.

2. Theory

By recording the tunneling current i during an experiment, the approximated F–N equation (Brodie and Spindt, 1992) can be used to obtain parameters for the field emission process (Eq. (1)). The original F–N equation (Fowler and Nordheim, 1928; Murphy and Good, 1956) was used for field emission between two flat metal surfaces at 0K but has been proved valid for other situations as well (Good and Mueller, 1956).

The field emission current i is given by

$$i = A \frac{1.5 \times 10^{-6}}{\phi} E_{loc}^2 \exp\left(\frac{10.4}{\sqrt{\phi}}\right) \exp\left(-\frac{6.44 \times 10^9 \phi^{3/2} d}{\gamma V}\right) \quad (1)$$

where A is the virtual source area, E_{loc} is the local electric field around the tip, d is the tip-anode separation distance, γ is the field enhancement factor, V is the potential applied to the anode and ϕ is the unreduced work function. The so-called F–N plot is described by $\ln(i/V^2)$ as a function of $1/V$ and its slope equals $-6.44 \times 10^9 \phi^{3/2} d/\gamma$ in the equation above (Gröning et al., 2000). Since the tip-anode separation distance d is easily observed in the TEM, only the field enhancement factor γ needs to be found, to be able to obtain the work function ϕ . The field enhancement factor γ describes how much the local electric field E_{loc} around the tip is enhanced when compared with a global electric field E_0 from a system consisting of two infinite and parallel plates, i.e. $E_{loc} = \gamma E_0 = -\gamma V/d$. We know the applied voltage V and d , so by finding E_{loc} we would attain γ and thus ϕ .

Off-axis electron holography is a powerful technique for retrieving the phase of the electron beam at the nanoscale. It has the advantage that the phase measured in the electron hologram is linearly related to the electrostatic potential experienced by the electron and can be used to quantify electrostatic fields. The phase shift of electrons traversing an electrostatic potential is obtained

by integrating the potential along the electron beam path and is described by

$$\varphi(x, y) = \int_{\text{beam path}} C_E V(x, y, z) dz \quad (2)$$

where $C_E = \pi E/\lambda$ and E being the relativistic energy of electrons, which depends on the acceleration voltage of the TEM, and λ is the electron wavelength. Here, in order to reduce the knock-on damage of the carbon atoms by the incoming electrons (Banhart, 1999), we used 100 kV acceleration voltage, which results in $C_E = 9.2 \times 10^{-3} \text{ rad V}^{-1} \text{ nm}^{-1}$. Since the potential varies continuously along the electron path, and particularly near to the tip where the field is stronger, it is not possible to directly compute the gradient of the phase shift map to obtain the electrostatic field components. The phase is a projection of the potential. We have therefore developed a three-dimensional model using FEM to quantitatively determine the local electric field E_{loc} around the tip by comparison with the experimental values.

We have assumed the beam path of the electrons to be straight, while in fact their paths have a small curvature due to the presence of an electric field around the apex of the CCnT. Considering that the electric field is extremely localized around the tip together with that the energy of the incoming electrons is in the order of 100 keV, we consider this deviation to have a negligibly small effect.

3. Experimental details

The CCnTs were made by chemical vapor deposition of carbon on a thin carbon wire produced by a catalytic process (Allouche et al., 2003; Jacobsen and Monthieux, 1997). The cones were extracted using a Kleindiek microtweezer inside a Zeiss Gemini scanning electron microscopy (SEM)-FIB workstation (see inset in Fig. 1 and Houdellier et al. (2012)). Gas-injection needles with tungsten-precursor were used to weld the CCnT on a mechanically cut W-wire which was later mounted inside a Nanofactory Instruments *in situ* TEM-scanning tunneling microscopy (STM) sample holder (Svensson et al., 2003), that has a nanomanipulator and biasing functionality. An anode was made by mechanically flattening out a Au-wire of an original diameter of 330 μm, which resulted in an area of the anode facing the CCnT of around 250 μm × 30 μm. A separation distance of 680 nm between the CCnT and anode was used, verified with the TEM (image Cs-corrected Schottky FEG FEI Tecnai F20), operated at 100 kV and with a vacuum around the specimen of 2.4×10^{-5} Pa. The TEM was operated in aberration corrected Lorentz mode, with the objective lens turned off and with the first transfer lens of the Cs-corrector used as Lorentz lens.

A Möllenstedt biprism (Möllenstedt and Düker, 1955) biased to 74.5 V was used to superimpose the incoming wave front that passed through the strong electric field close to the tip, with a reference wave that travelled further away from the tip (Fig. 2). The anode bias was increased in 1 V steps and holograms were recorded every 10 V or less, with an exposure time of 5 s. Reference holograms were obtained at 0 V. Using DigitalMicrograph (Gatan Inc.) and a modified version of HoloDark 1.2.1 (HREM Research), the holograms were Fourier transformed, and by choosing a mask (size chosen for a resulting spatial resolution of 6 nm) around the side-band towards the tip, an inverted Fourier transformation created the phase map in Fig. 3a. Internal reference areas of the phase map in Fig. 3a and the unwrapped phase map in Fig. 3b were used in order to see the relative phase shift of the electrons. In these areas the phase and the phase gradient were set to zero.

Profiles (Fig. 4) of the experimental and simulated phase shift (Figs. 3b and 7b, respectively) were made in DigitalMicrograph averaging over 16 nm.

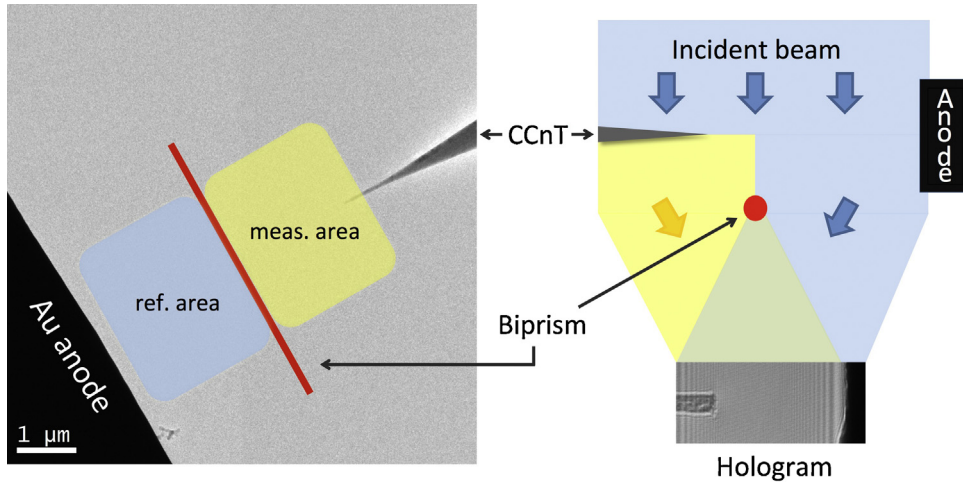


Fig. 2. The electron holography principle, to the left showing a TEM micrograph and top view, and to the right the side view. The tip radius in the hologram is 20 nm.

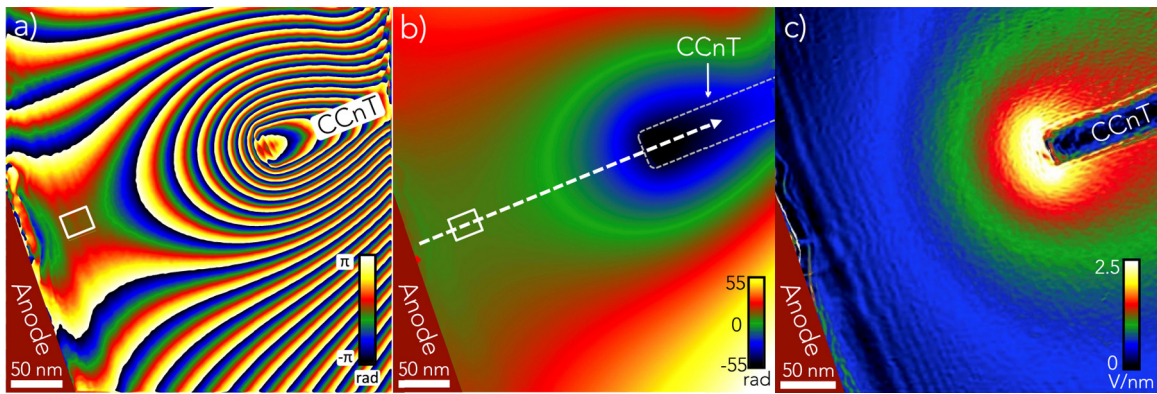


Fig. 3. (a) The experimental phase shift map at 80 V with similar colored lines corresponding to a change of a 2π phase shift. (b) The unwrapped version of (a), with the dotted arrow representing the position and direction from where the profile of the phase shift was obtained (see Fig. 4). (c) Shows the gradient of (b), which represents the integrated electric field (the legend was added only as an indication of the later quantitatively attained field). The white box in (a) and (b) shows the internal reference area.

As depicted in Fig. 1, the system permitted recording of the current. The field emission current as a function of voltage, $i(V)$, was saved while acquiring holograms with a stepwise increase of the voltage from 0 to 96 V (Fig. 5). The F–N plot was made by plotting the logarithm of i/V^2 over $1/V$ from 96 to 80 V (inset in Fig. 5).

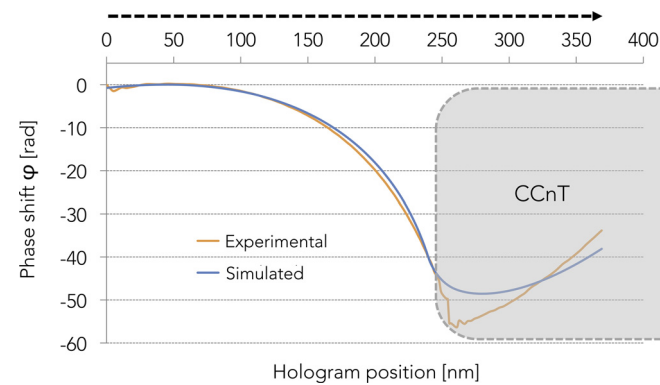


Fig. 4. Profiles of the unwrapped experimental phase map in Fig. 3b) and the simulated phase map from Fig. 7b). The profiles started from the left close to the anode and ending inside the center of the tip. The dotted arrow illustrates the direction from where the profiles were obtained. (For interpretation of the references to color in the text, the reader is referred to the web version of the article.)

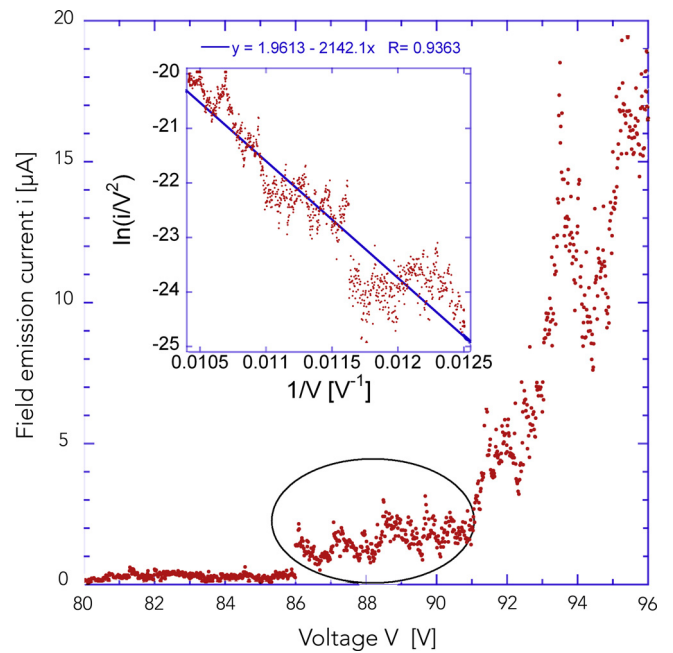


Fig. 5. The $i(V)$ curve obtained from the onset of field emission at 80 V. The inset shows the Fowler–Nordheim plot with the blue line being a linear fit. The peaks circled will be discussed in Section 5.2.

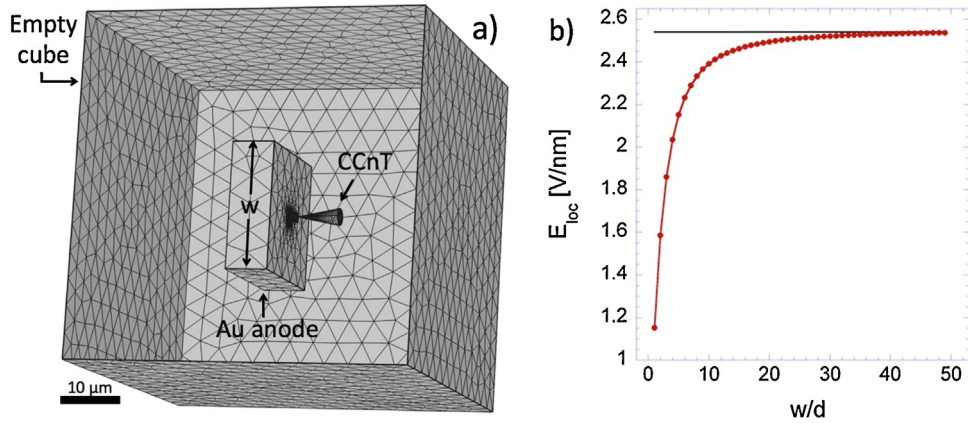


Fig. 6. (a) The FEM mesh showing the CCnT, anode and encapsulated cube (with one side being transparent for illustration purposes). (b) The graph illustrates the difference in electric field at the tip depending on the width and height w of the simulated anode for a tip radius $r=20$ nm, tip-anode distance $d=680$ nm and a potential on the anode of 80 V.

A three dimensional electrostatic model of the CCnT and anode was built using FEM (COMSOL Multiphysics 4.3a, electrostatics module). The model defines a $40 \mu\text{m}$ sided empty cube encapsulating a 500 nm long tubular structure with a semi-spherical top with radius of 20 nm connected to a $5 \mu\text{m}$ long cone with a base diameter of $2 \mu\text{m}$ of carbon. This simulated CCnT is at a distance of 680 nm from the Au anode with dimensions $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ (Fig. 6a). The anode was biased to 80 V and the cube and CCnT were grounded. The integration in Eq. (2) was performed in the modeling software by projecting a volume of $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m} \times 16 \mu\text{m}$ around the tip with the side of $16 \mu\text{m}$ being along the beam path and projection direction, multiplying the results by the constant C_E . The created phase map was processed using DigitalMicrograph by subtracting a reference part of the simulation from a measurement part, and, by using an internal reference area (Fig. 7b) in an identical way as for the experimental holograms (see Section 5.3).

Simulations of the potential and the electrostatic fields can be seen in Fig. 7a and c, represented as a slice of the field in the plane of the tip. To minimize the simulated anode size w , numerous finite element models were made varying w in order to find the convergence of the local electric field at the tip, E_{loc} . The resulting E_{loc} has been plotted as a function of the ratio of w and the tip-anode separation distance d (Fig. 6b). And, in order to show the evolution of the field enhancement factor γ when varying the tip-anode separation distance d and the CCnT tip radius r , simulations of the global electric field E_0 and the local electric field E_{loc} for different d (and r for the latter) were made. The results were plotted

as E_{loc} and γ as a function of d and r , and E_0 as a function of d (Fig. 8).

4. Results

4.1. Phase shift from electron holography

The approach of the CCnT towards the Au-anode was controlled by the nanomanipulator of the *in situ* TEM sample holder (Fig. 1). After a desired distance between the tip and the anode was reached, the bias was increased, creating a strong electric field around the apex of the CCnT. A set of holograms was then recorded as a function of the bias. The reference holograms recorded at 0 V were used to remove the phase change coming from the mean inner potential of the CCnT plus any artifacts due to optical distortions from the projector lenses, the camera or imperfections of the biprism wire. Fig. 3a shows the phase map extracted from a hologram recorded at 80 V which was at the onset of field emission. Fig. 3b is the corresponding unwrapped phase without phase jumps. The internal reference areas are indicated by the white square in Fig. 3a and b. Fig. 3c shows the gradient of the phase shift in Fig. 3b, which is a qualitative indication of the electric field around the CCnT.

The orange curve in Fig. 4 shows the profile of the unwrapped phase map in Fig. 3b, starting from the left close to the anode and ending to the right, inside the CCnT. The blue curve is the profile of the simulated phase map from Fig. 7b.

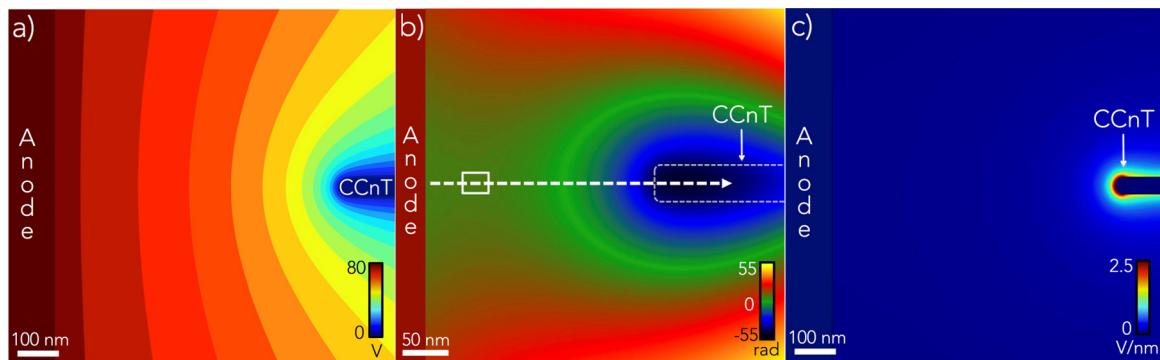


Fig. 7. Simulation of the CCnT and of the anode, with a tip radius of 20 nm and an anode potential of 80 V. The simulation was made with a tip-anode separation distance of 680 nm. In (a), a slice of the electrostatic potential in the plane of the tip can be seen (represented in 5 V increments), and in (b) the projected and processed phase shift map, with the rectangle showing the internal reference area and the dotted arrow the position and direction of where the profile was obtained (see Fig. 4), and in (c) the in-plane electrostatic field. (For interpretation of the references to color in the text, the reader is referred to the web version of the article.)

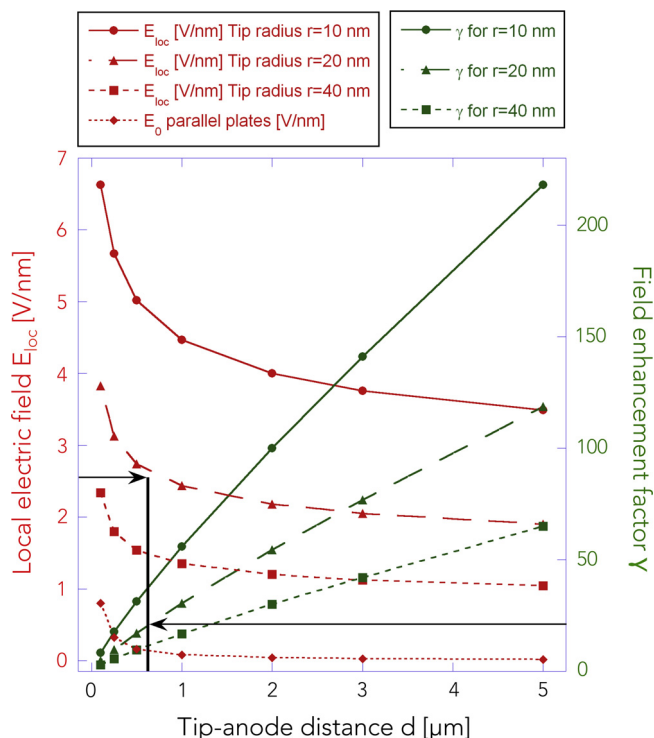


Fig. 8. The local electric field E_{loc} (in red, decreasing) and the field enhancement factor γ (in green, increasing) as a function of the tip-anode separation distance d and the tip radius r , and the global electric field E_0 as a function of d . The thick black line and two arrows points at the values used in this paper, i.e. a local electric field $E_{loc} = 2.55 \text{ V nm}^{-1}$ and field enhancement factor $\gamma = 21.7$ for a tip radius of 20 nm and tip-anode separation distance of 680 nm. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of the article.)

4.2. The field emission and Fowler–Nordheim plots

Fig. 5 shows the field emission $i(V)$ -curve that was obtained simultaneously with the holograms. The plot shows the current from the onset of field emission at 80–96 V. The data is notable noisy. The reason for this will be discussed in Section 5.2.

The inset shows the F–N plot, which was made by plotting $\ln(i/V^2)$ over $1/V$ from the onset at 80–96 V.

4.3. Phase shift from finite element modeling

The real anode measured $250 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m} \times 1000 \mu\text{m}$, but in order to minimize computer process time, the model was reduced in size. Simulations of different sized anodes were made to ensure convergence of the results.

Fig. 6b, displaying the electric field as a function of the ratio of the width w of the anode and the separation distance d , shows that for a ratio $w/d \geq 30$, the local electric field E_{loc} is only marginally affected. Having a separation distance between the CCnT and anode of 680 nm, we thus used a width and height of the anode of $20 \mu\text{m}$. The electric field not only depends on the size and shape of the apex of the tip, but also to some extent of the structure after it, which is the reason that not only the tip, but also part of the cone was included in the simulation (Fig. 6a). A comparison with a full model of the CCnT together with the W support after it (see Fig. 1), showed no significant difference. Most of the difference of the phase shift should come from the area close to the tip where the electric field is strongest. This was confirmed from simulations using different length of the integration paths. And finally, convergence plots varying the size of the empty cube, the depth of the anode and the size

of the mesh elements (Fig. 6a) have also been made to assure the accuracy of the model.

After having processed the phase maps from the simulations in an identical way to that of the phase maps from the holograms, the projected result was represented as in Fig. 7b. Further on, (a) shows a slice of the equipotential lines in the plane of the tip, which were used to calculate the phase shift in (b) using Eq. (2), and in (c), similarly to (a), a slice of the corresponding electrostatic field can be seen. The simulations included also a width of 90 nm for the biprism.

The blue curve in Fig. 4 shows the profile of the simulated phase shift map in Fig. 7b, starting from close to the anode to the left and ending inside the CCnT. When compared with the experimental phase shift profile (orange curve), it can be seen that we have an excellent agreement between experimental and simulated phase shift. With this very good correspondence, in both numbers and shape, we are ensured that the model is correct.

5. Discussion

Knowing that the model was accurate, we could extract the un-projected electric field (Fig. 7c) from the model. With an anode-potential of $V = 80 \text{ V}$, tip radius of 20 nm and tip-anode separation distance of $d = 680 \text{ nm}$ the local electric field was $E_{loc} = 2.55 \text{ V/nm}$. With the definitions mentioned before, we know that $E_{loc} = -\gamma V/d$ and together with Eq. (1), a field enhancement factor $\gamma = 21.7$ was obtained. As stated above, the slope in the F–N plot is equal to $-6.44 \times 10^9 \phi^{3/2} d/\gamma$ in Eq. (1), and from the fit in the inset in Fig. 5 the slope is equal to -2142 , which gave a work function of the CCnT of $\phi = 4.8 \pm 0.3 \text{ eV}$. The error will be discussed in Section 5.5.

5.1. The danger with the field enhancement factor

To discuss the results in a larger context, we have made simulations of the local electric field E_{loc} and the field enhancement factor γ . As can be seen in Fig. 8, the field enhancement factor is not only dependent on the tip radius r , but also largely on the tip-anode separation distance d . Our wish is that when comparing different field enhancing systems, the tip-anode separation distance should always be specified. This has also been pointed out before by Bonard et al. (2002) and de Jonge and Bonard (2004).

5.2. The irregular field emission $i(V)$ -curve

One reason for the irregularity of the $i(V)$ -curve in Fig. 5 comes from inherent properties of cold field emission. There are basically two different properties that create fluctuations in the current. First of all molecules adsorbed to the tip, which apart from increasing the work function and thus decreasing the field emission current, also create fluctuations in the current from the migration of the adsorbates (de Jonge, 2009). This effect is lessened by the CCnT being inert when compared with a standard W-tip (Saito and Uemura, 2000), but, since the vacuum of the column was around 10^{-5} Pa and within a cold-field emission gun it is in the order of 10^{-8} Pa , altogether the effect was more prominent. Secondly, the dominating reason for current fluctuations comes from anode degassing, with ions created close to and subsequently impinging the emitter surface (flicker noise). This is more important at higher currents since the level of noise is a product of field emission current and vacuum pressure (Todokoro et al., 1982). It would be interesting to study the field-emission current as a function of time at a constant voltage, to observe if heating of the tip would produce a more stable current (Sveningsson et al., 2005).

Another reason for the unevenness of the $i(V)$ -curve comes from the fact that the holograms were recorded during 5 s, during which

time the current decreased momentarily, due to the effect of adsorbates on the tip discussed in the paragraph above. In order to obtain field emission $i(V)$ -curves that were as continuous and accurate as possible, the voltage was increased 1 V per second and only the data 1 s after the increase in voltage was used. In other words, the current recorded during the time that the holograms were recorded is not shown in the $i(V)$ -curve in Fig. 5. The peaks indicated by the oval in Fig. 5 could come from that the voltage was increased in 1 V steps, since having a non-analogue increase of the voltage gives a peak in the current, but directly after the current diminishes.

5.3. No field-free reference area

The electric field in the reference beam area is not zero, since there is a very strong electric field at the tip and that the reference area is not very far from the anode or the tip. So in order to be able to compare the simulations with the experiment, the simulations were processed in exactly the same way as the holograms. This was done by using an internal reference area in the simulated phase shift map just as for the experimental phase maps, by setting the phase and phase gradient in this area to zero. Before the simulated electric field from the model can be used, the modeled and experimental phase shift should match. That is, the reference area in the simulated map should be chosen with caution. We have studied the error from this step and it was below 10% (see Fig. 4).

5.4. Difference in real and modeled tip shape

The tip of the CCnT was modeled as a semi-sphere. As can be seen in the hologram in Fig. 2, this is not the case. In reality, the apex of the CCnT comprises of two fairly sharp edges and an uneven surface with small protrusions. So how does this affect the results? It might be considered as being not important since the representation of the electric field in Fig. 3c shows a homogenous distribution of the intensity. This argument is somewhat diminished if we consider that we are observing a projection, which will have a smoothing-out effect. Nevertheless, simulations of small protrusions, both on the anode and on the apex of the CCnT, show that these do not play a part in the local electric field. We argue that it is a combination of tip radius and length of the structure that decides the strength of the electric field. This is only true up to a certain length of the tip; an infinitely long structure after the tip would only negligibly increase the local electric field. Numerical simulations of single and multiple CNTs of the electrostatic field from de Jonge and Bonard (2004) supports this argument as well and also that structures surrounding the emitting part play an important role in shielding the emitter. Using the imaging of the TEM, we observed no large protrusions on the tip that could have affected the local electric field significantly.

5.5. The error of the work function

Some of the input parameters in the simulation were uncertain. First of all the accuracy of measuring the tip radius gave $r = 20 \pm 1$ nm. Secondly, due to unevenness and shadowing effect of the anode, plus typical magnification error of the TEM of 2%, the tip-anode separation distance was $d = 680 \pm 10$ nm. To decrease the shadowing uncertainty of the anode, the CCnT was brought into contact to the anode before it was retracted to the specified separation distance. The error on the slope in the F–N plot (inset in Fig. 5) was estimated to be about 7%. These errors, together with the data from the previously mentioned convergence simulations of using smaller than in reality anode size, created an inaccuracy of the simulated local electric field $E_{loc} = 2.55 \pm 0.1$, which gives an error of the field enhancement factor $\gamma = 21.7 \pm 0.8$, which, at the end, gave a work function $\phi = 4.8 \pm 0.3$ eV.

Another possible error-contribution could be that not all of the electrons are being collected, due to the anode being too small. However, considering the proximity of the CCnT to the anode, we assume this effect to be negligible. The obtained work function corresponds well with e.g. de Jonge et al. (2004) where they obtained $\phi = 5.1 \pm 0.1$ eV for three to five walled CNTs, or Gao et al. (2001) where a method relying on mechanical resonance response of multiwalled CNTs were used, which resulted in a work function of 4.8 ± 0.2 eV. Thermionic emission from bundles of CNTs (Liu et al., 2008), photoelectron emission (Shiraishi and Ata, 2001) or photoemission electron microscopy (Suzuki et al., 2004) provided comparable results.

6. Conclusions

We have from the same *in situ* experiment extracted the local electric field E_{loc} , the work function ϕ , the field enhancement factor γ , the tip-anode distance d and the field-emission current i , without assuming any of the values. For future experiments, apart from using a TEM with a CFEG that delivers higher accuracy in the electron holography measurements, we will use improved and automated electron holography techniques that permits capturing continuous field emission $i(V)$ -curves with the holograms. This will hopefully determine the work function with a smaller error.

It would also be interesting to perform the same experiment and calculations for a standard W cold field emitter, to see if those results would correspond with results from other techniques. The authors acknowledge the European Integrated Infrastructure Initiative reference 312483-ESTEEM2 and the French "Investissement d'Avenir" program reference No. ANR-10-EQPX-38-01.

References

- Allouche, H., Monthieux, M., Jacobsen, R.L., 2003. Chemical vapor deposition of pyrolytic carbon on carbon nanotubes. Part 1. Synthesis and morphology. *Carbon* 41, 2897–2912.
- Banhart, F., 1999. Irradiation effects in carbon nanostructures. *Rep. Progr. Phys.* 62, 1181–1221.
- Bonard, J.M., Croci, M., Arfaoui, I., Noury, O., Sarangi, D., Châtelain, A., 2002. Can we reliably estimate the emission field and field enhancement factor of carbon nanotube film field emitters? *Diam. Relat. Mater.* 11, 763–768.
- Brodie, I., Spindt, C.A., 1992. *Advances in Electronics and Electron Physics*, vol. 83. Academic Press Inc., San Diego, pp. 1–106.
- Cumings, J., Zettl, A., McCartney, M., Spence, J., 2002. Electron holography of field-emitting carbon nanotubes. *Phys. Rev. Lett.* 88, 1–4.
- de Jonge, N., 2009. Carbon nanotube electron sources for electron microscopes. In: Hawkes, P. (Ed.), *Advances in Imaging and Electron Physics*. Elsevier, Amsterdam, pp. 203–233.
- de Jonge, N., Allieux, M., Doytcheva, M., Kaiser, M., Teo, K.B.K., Lacerda, R.G., Milne, W.I., 2004. Characterization of the field emission properties of individual thin carbon nanotubes. *Appl. Phys. Lett.* 85, 1607–1609.
- de Jonge, N., Bonard, J.M., 2004. Carbon nanotube electron sources and applications. *Philos. Trans. R. Soc. A: Math. Phys. Eng. Sci.* 362, 2239–2266.
- de Jonge, N., Lamy, Y., Kaiser, M., 2003. Controlled mounting of individual multi-walled carbon nanotubes on support tips. *Nano Lett.* 3, 1621–1624.
- de Jonge, N., Lamy, Y., Schoots, K., Oosterkamp, T.H., 2002. High brightness electron beam from a multi-walled carbon nanotube. *Nature* 420, 393–395.
- de Jonge, N., van Druen, N.J., 2003. Field emission from individual multiwalled carbon nanotubes prepared in an electron microscope. *Ultramicroscopy* 95, 85–91.
- Fowler, R.H., Nordheim, L., 1928. Electron emission in intense electric fields. *Proc. R. Soc. Lond.* 781, 173–181.
- Gao, R., Pan, Z., Wang, Z., 2001. Work function at the tips of multiwalled carbon nanotubes. *Appl. Phys. Lett.* 78, 1757–1759.
- Good, R.H., Mueller, E.W., 1956. *Handbuch der Physik*. Springer Verlag, Berlin, pp. 176–231.
- Gröning, O., Küttel, O.M., Emmenegger, C., Gröning, P., Schlappbach, L., 2000. Field emission properties of carbon nanotubes. *J. Vac. Sci. Technol. B* 18, 665–678.
- Hazra, K.S., Jain, V., Misra, D.S., 2011. The role of tunneling barrier modification for the saturation current of carbon nanotube field emission in strong electric field. *Chem. Phys. Lett.* 502, 194–197.
- He, K., Cho, J.-H., Jung, Y., Picraux, T.S., Cumings, J., 2013. Silicon nanowires: electron holography studies of doped p–n junctions and biased Schottky barriers. *Nanotechnology* 24, 1–6.
- Houdellier, F., Masseboeuf, A., Monthieux, M., Hÿtch, M.J., 2012. New carbon cone nanotip for use in a highly coherent cold field emission electron microscope. *Carbon* 50, 2037–2044.

- Hýtch, M., Houdellier, F., Hüe, F., Snoeck, E., 2008. Nanoscale holographic interferometry for strain measurements in electronic devices. *Nature* 453, 1086–1089.
- Iijima, S., 1991. Helical microtubules of graphitic carbon. *Nature* 354, 56–58.
- Jacobsen, R.L., Monthieux, M., 1997. Carbon beads with protruding cones. *Nature* 385, 211–212.
- Krivanek, O.L., Lovejoy, T.C., Dellby, N., Carpenter, R.W., 2013. Monochromated STEM with a 30 meV-wide, atom-sized electron probe. *Microscopy* 62, 3–21.
- Liu, P., Sun, Q., Zhu, F., Liu, K., Jiang, K., Liu, L., Li, Q., Fan, S., 2008. Measuring the work function of carbon nanotubes with thermionic method. *Nano Lett.* 8, 647–651.
- Möllenstedt, G., Düker, H., 1955. FRESNELscher Interferenzversuch mit einem Biprisma für Elektronenwellen. *Naturwissenschaften* 42, 41.
- Murphy, E.L., Good, R.H., 1956. Thermionic emission, field emission, and the transition region. *Phys. Rev.* 102, 1464–1473.
- Ribaya, B.P., Leung, J., Brown, P., Rahman, M., Nguyen, C.V., 2008. A study on the mechanical and electrical reliability of individual carbon nanotube field emission cathodes. *Nanotechnology* 19, 1–8.
- Saito, Y., Seko, K., Kinoshita, J.-I., 2005. Dynamic behavior of carbon nanotube field emitters observed by in situ transmission electron microscopy. *Diam. Relat. Mater.* 14, 1843–1847.
- Saito, Y., Uemura, S., 2000. Field emission from carbon nanotubes and its application to electron sources. *Carbon* 38, 169–182.
- Shiraishi, M., Ata, M., 2001. Work function of carbon nanotubes. *Carbon* 39, 1913–1917.
- Suzuki, S., Watanabe, Y., Homma, Y., Fukuba, S.-Y., Heun, S., Locatelli, A., 2004. Work functions of individual single-walled carbon nanotubes. *Appl. Phys. Lett.* 85, 127–129.
- Svensson, K., Jompol, Y., Olin, H., Olsson, E., 2003. Compact design of a transmission electron microscope-scanning tunneling microscope holder with three-dimensional coarse motion. *Rev. Sci. Instrum.* 74, 4945–4947.
- Sveningsson, M., Hansen, K., Svensson, K., Olsson, E., Campbell, E., 2005. Quantifying temperature-enhanced electron field emission from individual carbon nanotubes. *Phys. Rev. B* 72, 085429-1–085429-5.
- Todokoro, H., Saitou, N., Yamamoto, S., 1982. Role of ion bombardment in field emission current instability. *Jpn. J. Appl. Phys.* 21, 1513–1516.
- Yuge, R., Toyama, K., Ichihashi, T., Ohkawa, T., Aoki, Y., Manako, T., 2012. Characterization and field emission properties of multi-walled carbon nanotubes with fine crystallinity prepared by CO₂ laser ablation. *Appl. Surf. Sci.* 258, 6958–6962.

In situ electron holography of the dynamic magnetic field emanating from a hard-disk drive writer

Joshua F. Einsle¹, Christophe Gatel^{2,3} (✉), Aurélien Masseboeuf², Robin Cours², Muhammad A. Bashir⁴, Mark Gubbins⁴, Robert M. Bowman¹, and Etienne Snoeck²

¹ Centre for Nanostructured Media, School of Mathematics and Physics, Queen's University Belfast, Belfast BT7 1NN, UK

² CEMES–CNRS, 29 rue J. Marvig, 31055 Toulouse, France

³ Université de Toulouse Paul Sabatier, 118 route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex 9, France

⁴ Seagate Technology, 1 Disc Drive, Springtown Industrial Estate, Derry City, Co. BT48 OBF Londonderry, UK

Received: 21 July 2014

Revised: 6 September 2014

Accepted: 10 October 2014

© Tsinghua University Press
and Springer-Verlag Berlin
Heidelberg 2014

KEYWORDS

electron transmission
microscopy,
off-axis electron
holography,
in situ,
magnetic field,
magnetic recording,
hard disk write pole

ABSTRACT

The proliferation of mobile devices in society accessing data via the “cloud” is imposing a dramatic increase in the amount of information to be stored on hard disk drives (HDD) used in servers. Forecasts are that areal densities will need to increase by as much as 35% compound per annum and by 2,020 cloud storage capacity will be around 7 zettabytes corresponding to areal densities of 2 Tb/in². This requires increased performance from the magnetic pole of the electromagnetic writer in the read/write head in the HDD. Current state-of-art writing is undertaken by morphologically complex magnetic pole of sub 100 nm dimensions, in an environment of engineered magnetic shields and it needs to deliver strong directional magnetic field to areas on the recording media around 50 nm × 13 nm. This points to the need for a method to perform direct quantitative measurements of the magnetic field generated by the write pole at the nanometer scale. Here we report on the complete *in situ* quantitative mapping of the magnetic field generated by a functioning write pole in operation using electron holography. The results point the way towards a new nanoscale magnetic field source to further develop *in situ* transmission electron microscopy.

1 Introduction

The read/write head is the small active part of the slider component located at the end of the actuator arm inside a hard disk drives (HDD). A schematic drawing of a slider is shown in Fig. 1(a). In Fig. 1(b)

is a SEM image of the read/write parts that face the media with a zoom of the write pole region. The yellow arrows illustrate the direction of travel of the media beneath the write pole. The writing/erasing magnetic field is generated by the current flowing in the coils intended to behave linearly with the applied

Address correspondence to gatel@cemes.fr

current without hysteresis when reversing the current to allow for the fast, accurate writing and erasing of data [1] (a cross section of the read/write element is presented in Figs. S1 and S2 in the Electronic Supplementary Material (ESM), in which the yoke and return poles of the writer electromagnet and the drive coils are identified). To precisely tailor the profile of the emanating magnetic field, the current carrying coils and bulk magnetic material of the writer are shielded from the disk media. This also ensures that the magnetic environment experienced by the media is dominated by the write pole and not from other surfaces of this three-dimensional electromagnetic device. These shields are composed of soft magnetic materials to intensify the magnetic field gradients coming out of the write pole and are shown in the zoomed image in Fig. 1(b).

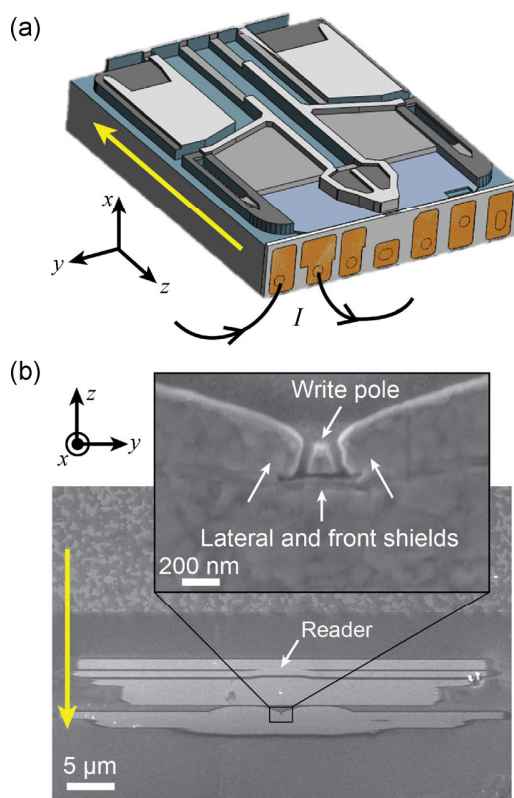


Figure 1 (a) Schematic illustration of the HDD slider (I corresponds to the injected current); (b) high magnification SEM image of the read/write parts with a zoom of the write pole inset. The yellow arrows indicate the flying direction of the magnetic media and the electron path for TEM experiments. The xy plane will correspond to the studied area in the following figures while the z -axis is parallel to the electron path.

Current understanding about the behaviour, shape and strength of the magnetic field generated by this nanoscale electromagnet arises from indirect methods. Either the size and shape of the written magnetic bits are measured on the magnetic media [2] or numerical simulations are performed to visualize the fields emanating from the pole. With continued downscaling of the write pole to critical dimensions numerical approaches will become essential but computationally complex. Additionally, the development of new technologies like heat assisted magnetic recording (HAMR) [3, 4] which combines an optical field to reduce the media coercivity with the writing/erasing magnetic field will make magnetic write tests even more difficult. A direct approach for the visualization and quantification of the magnetic field produced by a write pole would be of significant technological benefit for the characterization of HDD read/write heads performance. In this study, we have developed such a tool, by combining the powerful TEM technique of off-axis electron holography (EH) with *in situ* electrical biasing to actively vary the magnetic field produced by a fully operational HDD write pole. EH is an efficient interferometric TEM method enabling the quantitative mapping of local electrostatic and magnetic fields with a resolution of few nanometres over a field of view as large as few microns [5–9]. For this particular study, we have developed a new set-up allowing for the first time to quantitatively map the magnetic fields generated by the writer as a function of applied electrical currents up to ± 60 mA. The resulting quantified magnetic field maps demonstrate the key features required in magnetic recording, namely a highly directional magnetic field with low angular spread.

Further, while we are able to tune the applied current in series of steady state steps, this dynamic fluxing of the magnetic field paves way for two innovative applications in EH. The writer and its wiring circuitry are designed to operate to GHz frequencies; it therefore opens up the potential for the acquisition of quantitative information of the magnetic induction generated by the writer as a function of the applied current frequency. Then, of more general interest, it points to a new development of new *in situ* EH TEM experiments whereby a nanoscale

magnetic field source can be incorporated into sample stage assemblies for *in situ* magnetic experiments of wider interest.

2 Experimental

The write pole is an extensively studied device due to its importance in the operation of HDDs. Along with other techniques, EH has been used to study thin section lamellae of the write pole [7, 8] and demonstrates how magnetic domains form under various externally applied magnetic fields. These basic experiments do not, however, give information about the generation of a magnetic field by the write pole itself in operating conditions when electric current is sent into the coils. Recently, *in situ* EH approaches have been attempted to characterize the write pole device [9]. While Goto et al. demonstrate that a field can be imaged *in situ* they did not fully isolate and characterize the magnetic field of the write pole in operational conditions. Presenting only partial magnetic information with the writer still imbedded in the shield material, the magnetic signal resulting of the current flowing in the coils cannot be separate from the one due to the shields neither from additional artefacts originating from electrostatic potential. We have developed a novel strategy that allows imaging an operational write pole *in situ* in a TEM in normal conditions, to obtain the complete local hysteresis loop on each point of a large area and quantitatively separate the magnetic signals originating solely from the write pole and those of the shield material, while dynamically changing the applied current through the write coils.

As outlined, the difficulty in developing a method for directly imaging the write pole's magnetic fields lies in keeping the necessary electrical circuitry undamaged to drive the writer, while making it fit in a TEM stage. In this work, we achieve this through reducing the overall size of a HDD slider from 1.2 mm down to 30 μm by mechanically polishing while keeping intact the electrical contacts pads and coils used by the device. An additional issue is to provide a scheme to locate the plane in which the write pole resides, because in this EH experiment the electron beam passes adjacent to the face of the write pole. To do so, focused ion beam induced deposition

was used to grow a pair of fiducial carbon pillars on each side of the write pole prior to TEM investigation. The thinned device is then wire bonded to an *in situ* electrical biasing holder and transferred to the microscope (sample preparation details are given in the ESM).

The *in situ* TEM experiment was performed in Lorentz mode on a Cs-corrected Tecnai F20 microscope operating at 200 kV. A Möllensted biprism, positioned parallel to the surface of the slider at a distance of about 600 nm, is used to create the interference pattern between part of the electron beam interacting with the generated magnetic induction field in front of the write pole and part of the beam that passes far from it through an almost field-free region, so-called "reference beam" (a low magnification image of the whole area is given in the ESM). The analysis of the interference pattern (i.e. the electron hologram) allows extraction of the phase shift between the reference beam and the one that has interacted with the magnetic induction.

In our experiment, the electron phase shift (φ) is only related to the magnetic induction through the Aharonov–Bohm relation [10–13]

$$\varphi(\mathbf{r}) = -\frac{e}{\hbar} \iint B_{\perp}(\mathbf{r}, z) d\mathbf{r} dz \quad (1)$$

where $\mathbf{r} = (x, y)$ represents the position vector in the plane perpendicular to the electron path (x and y directions), e is the elementary charge, B_{\perp} is the component of the magnetic induction in the plane perpendicular to \mathbf{r} and to the beam direction z , \hbar is the reduced Planck's constant ($h/2\pi$). The measured phase shift corresponds to a projection and an integration of all in-plane magnetic field contributions along the electron path. Numerical simulations are generally unavoidable taking into account the two-dimensional projection of a three-dimensional field.

3 Results and discussion

3.1 Magnetic phase shift as function of current

Applying a current to the device generates a magnetic field that can be directly visualized by studying the phase image calculated in-line from the hologram [14].

After determining the precise location of the write pole and adjusting carefully the orientation of its exposed surface parallel to the electron beam, we fully characterized the generated magnetic induction by collecting two series of 44 holograms. A first sequence was acquired with the applied current varying from -60 to $+60$ mA, and a second series reverses this sequence by running the current from $+60$ to -60 mA to effectively perform hysteresis loop measurements. Phase shift images obtained with currents of -60 , -10 , 0 , 10 , 60 mA are reported in the left column of Fig. 2. The projected magnetic field is parallel to the isophase lines. Considering that $B_{\perp} = (B_x, B_y)$, the x and y components of the magnetic induction integrated over the beam path can then be extracted by calculating respectively the y and x derivatives of the phase shift image (after unwrapping to remove the phase jumps) following the equations

$$\int B_x(\mathbf{r})dz = -\frac{\hbar}{e} \frac{d}{dy} \phi(\mathbf{r}) \quad (2a)$$

$$\int B_y(\mathbf{r})dz = \frac{\hbar}{e} \frac{d}{dx} \phi(\mathbf{r}) \quad (2b)$$

$\int B_y(\mathbf{r})dz$ and $\int B_x(\mathbf{r})dz$ are mapped using Eqs. 2(a) and 2(b) and reported in the two columns on the right side of Fig. 2 for the five corresponding currents. The phase images and magnetic field components are symmetric with respect to the “ x ” axis for applied current of opposite sign. For 0 mA applied current the magnetic flux is only found between the shields located on each side of the pole indicating that the integrated B_x component of the magnetic induction is zero for the direction perpendicular to the write pole.

Beside these two-dimensional maps of the magnetic induction generated by the write pole in operation, the EH experiment allows for the quantitative determination of the induction field at any point of the studied area and for each value of the applied continuous current. It then permits extraction of local hysteresis loops of the two components of the magnetic induction. As an illustration, we extracted four hysteresis loops of the B_x and B_y components averaged over a $(5 \times 5) \text{ nm}^2$ region at four different positions in front of the device (denoted 1, 2, 3, and 4 in the first B_x and B_y images of Fig. 2) for current varying from $+60$ to -60 mA

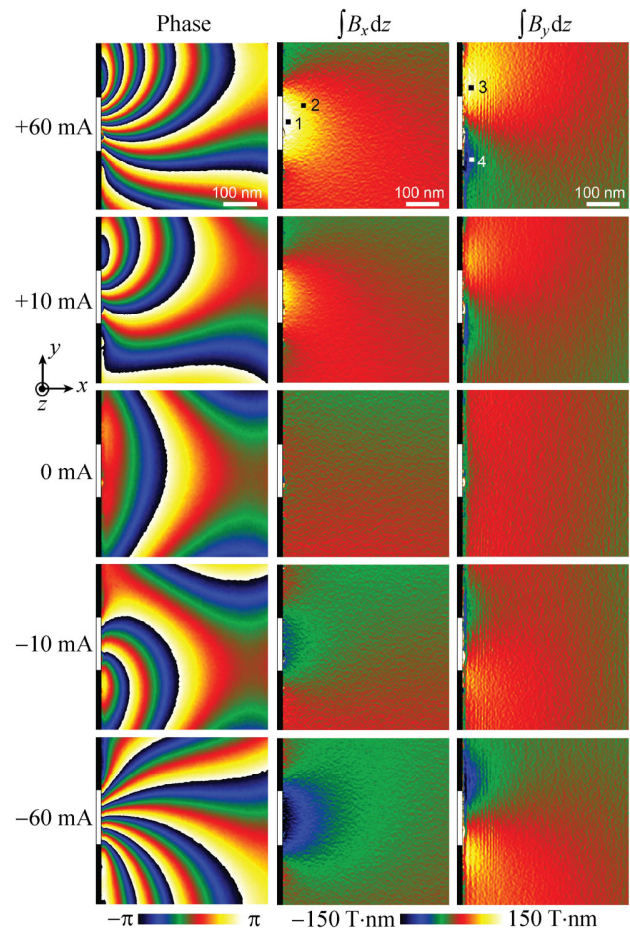


Figure 2 Left column: Experimental phase image of the magnetic flux recorded in front of the write pole for an applied current of $+60$, $+10$, 0 , -10 and -60 mA. Middle column: Corresponding B_x components map integrated over the beam path. Right column: The corresponding B_y components map integrated over the beam path. The white rectangle on the middle left side of each image is the write pole location.

then from -60 to $+60$ mA. These local hysteresis loops are reported in Figs. 3(a) and 3(b) for B_x and B_y respectively. The two B_x hysteresis loops in Fig. 3(a) evidence that the magnetic saturation is reached for an applied current of about 25 mA. They also indicate the absence of remnant and coercive fields that both are expected for a HDD read/write device. This results also evidences the induction field reduction when moving away from the central part of the pole, i.e. when moving from position (1) located at 5 nm in front of pole to position (2) displaced by 50 nm both in x and y directions (this magnetic field decrease is also evidenced in Fig. S5, in the ESM).

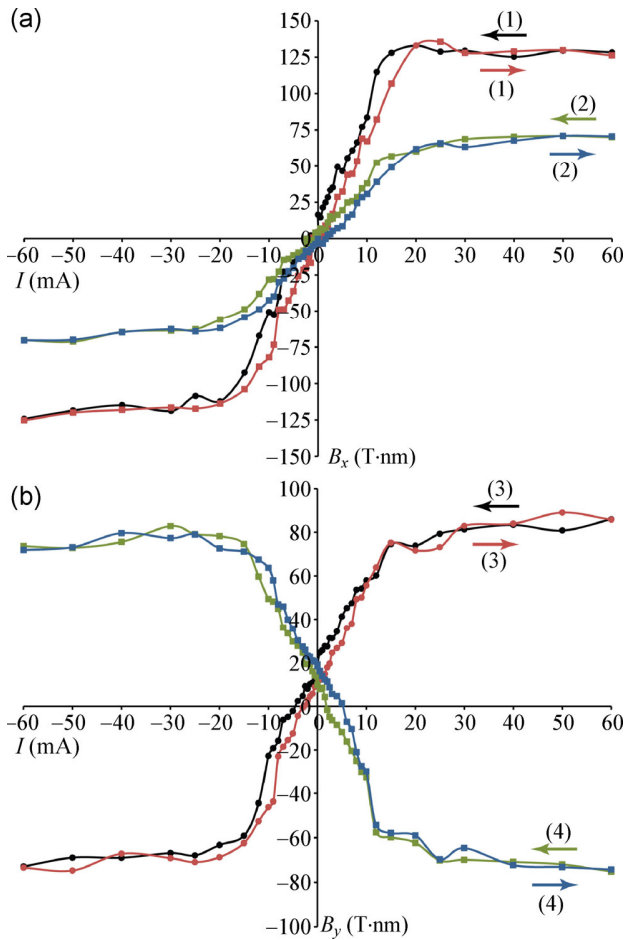


Figure 3 (a) Hysteresis loops of the B_x component extracted from Fig. 2 (middle column) at positions (1) and (2); (b) hysteresis loops of the B_y component extracted from Fig. 2 (right column) at positions (3) and (4).

The two B_y hysteresis loops reported in Fig. 3(b) for two symmetrical positions (3) and (4) on each side of the pole (at position $x = 20$ nm and $y = \pm 100$ nm) show that the magnetic induction remains symmetric with respect to the write pole. In addition, these B_y hysteresis loops indicate the appearance of a constant magnetic field for zero applied current. This magnetic field is due to the lateral magnetic shields adjacent to the write pole. The total magnetic induction in front of the write pole is therefore the superimposition of the constant magnetic induction created by the shields and the one generated by the current sent into the writer coils. Changing the polarity of the applied current results the reversal of the direction of the induced magnetic field, while the shield magnetic induction remains constant. Therefore, the half-sum

of two phase-images obtained with reversal current gives the magnetic contribution of the shields while their half-difference results in the phase contribution of the writer only. Figure 4 illustrates the results of these calculations. The images on the top show the magnetic induction created by the writer only for applied currents of 0, +10 and +60 mA while the ones at the bottom of the image are the magnetic induction of the shield. The latter remains constant, and indicates that the shield produces an almost flat and constant magnetic field running between the shields from one side of the write pole to the other. The gradient of the shield induction is perpendicular to that of the write pole and much lower.

3.2 Micromagnetic simulations

Such quantitative measurements of the magnetic induction should be confirmed by numerical simulation to ensure that the region where the reference beam has been selected is indeed field free, or contains a negligible field, and does not create artefacts in the final phase image. We use the finite element package Magpar [15] to simulate the entire write pole system using the dimensions of the write pole extracted from SEM images. The standard bulk values of the magnetic constants of the various materials comprising the write pole system are used (writer, shields, etc.). We ensure that the device model and its materials are saturated by the application of an initial current of +40 mA before extracting steady state information.

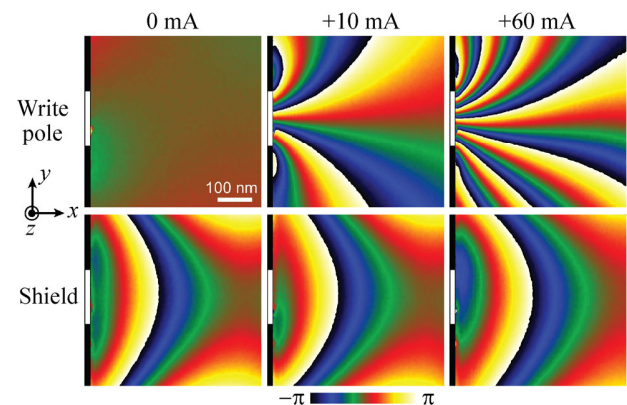


Figure 4 Upper row: Experimental images of the magnetic flux generated by the write pole for applied currents of 0, +10 and +60 mA, Bottom row: Experimental images of the magnetic flux due to the shield which remains constant.

We then generate the magnetic flux spreading in a three-dimensional (1, 1.5, 0.8 μm) region in front of the whole device for an applied current of +40 mA (an image of the simulation box is reported in Fig. S3 (in the ESM)).

The resulting magnetic induction flux is used to calculate the phase shift of the electron beam passing across the box. The resulting phase image is reported in Fig. 5(a). We then calculated the difference between the simulated phase of the electron beam that has passed within a 500 nm wide region close to the write pole (object wave area in Fig. 5(a)) and the simulated phase of the electron beam that has passed in 500 nm wide region which is not perfectly field free located 500 nm far from it (reference wave area in Fig. 5(a)).

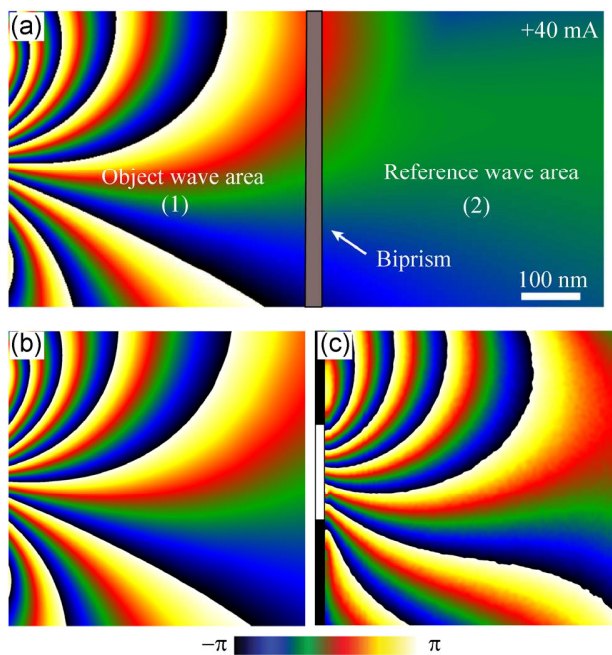


Figure 5 (a) Simulated phase of the electron beam after its interaction with the device magnetic induction over a $500\text{ nm} \times 1\text{ }\mu\text{m}$ box and projected along the beam path. The biprism is located in the middle of the image and creates interference between the regions (1) and (2) of the electron beam passing on each side of it. The simulation has been realized for an applied current of +40 mA; (b) simulated phase image resulting on the difference of the phases in region (1) and (2) taking into account the influence of the remaining magnetic induction in the reference beam. The modification arising from the remaining field of the reference area is negligible; (c) experimental phase image at +40 mA. We note the very nice agreement with the simulation image in (b).

The resulting phase image is reported in Fig. 5(b) and presents a very good agreement with the experimental one at the same injected current (Fig. 5(c)). We can note that the modification of the simulated phase due to the weak field in the reference wave area is negligible. A more quantitative comparison can be achieved drawing the simulated (including or not the reference wave contribution) and experimental induction profiles from the B_x component at 40 mA (Figs. 6(a) and 6(b)) along two directions: One along the “ x ” direction at position $y = 0$ (Fig. 6(c)), the other along the “ y ” direction at position $x = 5\text{ nm}$ from the writer surface corresponding to the position of the media in operation (Fig. 6(d)). The simulated profiles fit very well with the experimental ones and confirm the negligible effect arising from the remaining field of the reference area. This result supports both the model we use for the device and the EH procedure. It also confirms that the magnetic induction generated by the write pole is as expected when saturating it, for the materials and geometrical considerations.

3.3 Magnetic induction mapping

We have shown that EH allows the quantitative mapping of the magnetic induction in front of the device and therefore is appropriate to analyse its capability to focus the flux to a recording media. In addition, the write pole contribution can be perfectly isolated. These *in situ* EH experiments allow a quantitative 3D data cubes $B_x(x, y, I)$ and $B_y(x, y, I)$ of the local magnetic induction components relevant to be constructed and thus characterize the magnetic field generated by the write pole only at various (x, y) positions in front of it (Fig. 7(a)). The component of the hysteresis loop perpendicular to the device, B_x , is of particular interest as it is the part of the induction that writes magnetic bits on the media. A clear visualization of B_x can be obtained plotting a series of $B_x(I)$ hysteresis loops extracted from the data cube $B_x(x, y, I)$ at position $y = 0$, in front of the write pole piece (noted (1) on Fig. 7(a)), and for increasing distance from it (i.e. as function of “ x ”). This surface plot is reported in Fig. 7(b) together with the $B_x(x, y, I)$ data cube (Fig. 7(a)). It shows that the symmetry of the hysteretic behavior remains with a decreasing

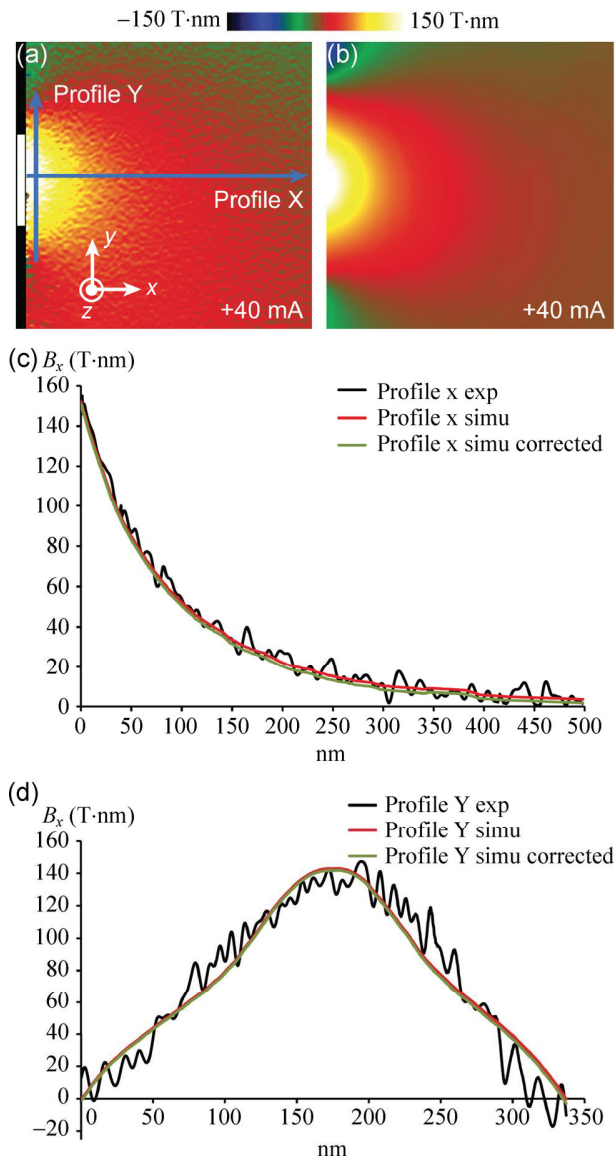


Figure 6 (a) Experimental image of the B_x component of the magnetic induction for a +40 mA applied current; (b) simulated image of the B_x component of the magnetic induction for a +40 mA applied current; (c) experimental (black) profile of the B_x component extracted along the “x” direction at position $y = 0$ (horizontal blue arrow on (a)). Simulated profiles in red (without reference area correction) and green (with correction); (d) experimental (black) profile of the B_x component extracted along the “y” direction at position $x = 5$ nm from the writer surface (vertical blue arrow in (a)). Simulated profiles in red (without reference area correction) and green (with correction).

magnitude versus the distance from the write pole down to 0 T as the sampling position goes out beyond 400 nm. A similar surface plot can be extracted to evidence how focused the magnetic induction is 5 nm

in front of the writer, which is approximately the distance between the read/write head and the media in normal operation and is reported in Fig. 7(c) (extracted from position noted (2) in Fig. 7(a)).

Further manipulations of the B_x and B_y data cubes allow quantifying the magnetic flux spreading by calculating $|\tan^{-1} |B_y / B_x||$ for a given current. It results in an image that exhibits the magnetic induction spread from the write pole source to the vacuum. In Fig. 8(a) is reported the angular spread of the magnetic flux observed for a +60 mA applied current. A quantitative measurement of the magnetic flux divergence can be extracted at the position where the magnetic media is flying 5 nm in front of the pole. For +60 mA applied current the magnetic flux spreading over $\Delta\theta = 10^\circ$ angle (noted $\pm 5^\circ$ on Fig. 8(b)) is radiating over a 15 nm wide region at 5 nm from the pole. We plot in Fig. 8(a) the variation of the radiated regions located at 5 nm in front of the pole as a function of the applied current and for various flux divergences. This demonstrates how the lateral shields are efficient in focusing the field onto the media for current varying between 10 and 60 mA and how the flux drops off laterally (to prevent interference across adjacent recorded tracks in the media). From the HDD application point of view this illustrates that only the media directly under the write pole will experience any significant magnetic interaction for writing/erasure processes.

4 Conclusions

We have developed a new *in situ* TEM process allowing the quantitative measurement of the magnetic field generated by a HDD writer in operation at the nanometer scale. The combination of off-axis electron holography with micromagnetic simulations allows us to quantify the full magnetic response of the write pole to various applied currents. We demonstrate that there is no remnant field along the perpendicular direction to the surface of the write pole when no current is applied. We have been able to confidently determine the magnetic field in saturation conditions and to measure the local hysteresis loop for any point of the studied region. We show how to separate the different contributions of the shield and the write

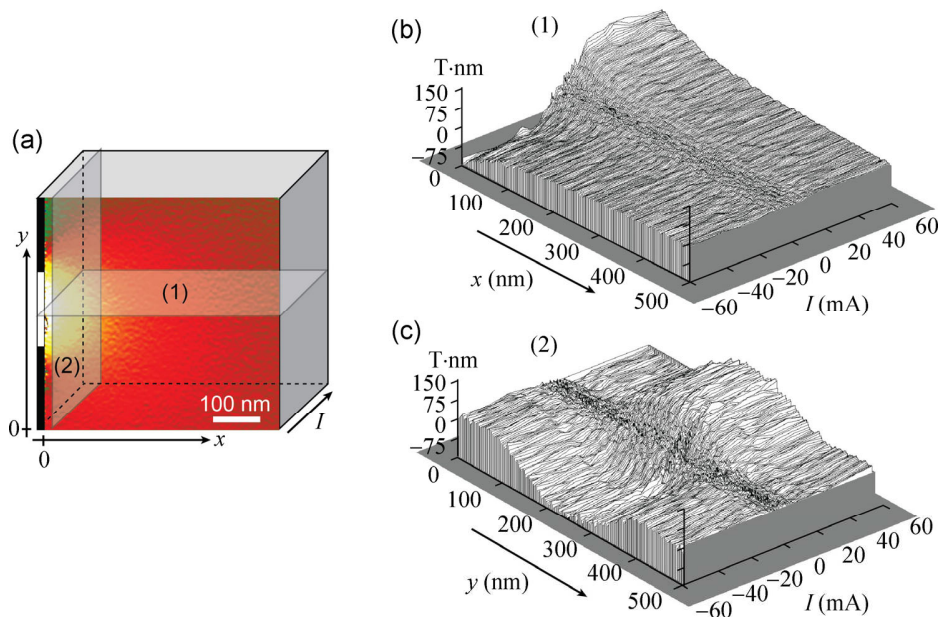


Figure 7 (a) The experimental $B_x(x, y, I)$ data cube of the write pole contribution; (b) $B_x(I)$ surface plot of the hysteresis loops extracted from (a) at $y = 0$ for increasing distance from the write pole (plane (1) in (a)); (c) $B_x(I)$ surface plot of the hysteresis loops extracted from (a) as function of the lateral “y” positions and at a distance $x = 5$ nm from the pole (plane (2) in (a)).

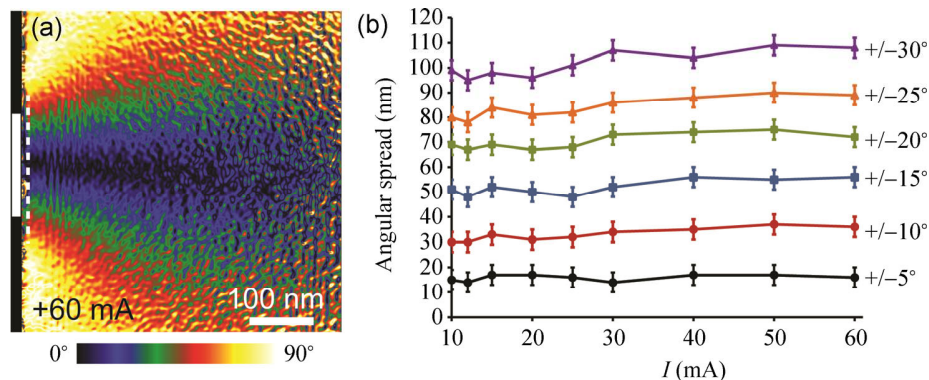


Figure 8 (a) Angular spread of the magnetic flux observed for an applied current of +60 mA; (b) variation of the radiated region width at 5 nm in front of the pole (dashed line in (a)) as a function of the applied current and for various flux divergences.

pole and characterize the angular spread of the magnetic field as a function of current. We have therefore demonstrated the power of holography to characterize active magnetic systems and provided baseline device characterization important for design of next generation write poles. As the control circuitry of the writer are designed to accommodate time varying signals up to the GHz range, further *in situ* electron holography experiments are now feasible to analyze the magnetic induction damping as function of the applied current frequency used in data storage.

In addition, this work has laid the foundation for the development of a new type of *in situ* magnetic instrumentation for TEM. A HDD write device could well be used to create a local magnetic source for fundamental magnetic studies *in situ* in TEM. Since the magnetic field coming off the pole tip is located in the in-plane direction, various magnetic nano-materials could be placed into a tunable magnetic field generated by the write pole and their local magnetic response studied *in situ*. This would open up new methods for studying systems like data storage

media under realistic conditions. Additionally, more exotic systems can now be explored in more detail such as magnetic nanoparticles, magnetic tunnel junctions or artificial spin ices [16, 17].

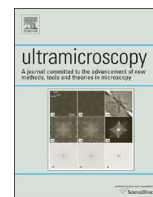
Acknowledgements

The authors acknowledge the European Union under the Seventh Framework Programme under a contract for an Integrated Infrastructure Initiative Reference (No. 312483-ESTEEM2) and the French National Research Agency under the “Investissement d’Avenir” program reference (No. ANR-10-EQPX-38-01). This work is supported by the French national project EMMA (No. ANR12 BS10 013 01).

Electronic Supplementary Material: Supplementary material (details of the sample preparation, the electron holography quantification and the micromagnetic simulations) is available in the online version of this article at <http://dx.doi.org/10.1007/s12274-014-0610-0>.

References

- [1] Richter, H. J. The transition from longitudinal to perpendicular recording. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **2007**, *40*, R149–R177.
- [2] Manalis, S.; Babcock, K.; Massie, J.; Elings, V.; Dugas, M. Submicron studies of recording media using thin film magnetic scanning probes. *Appl. Phys. Lett.* **1995**, *66*, 2585–2587.
- [3] Stipe, B. C.; Strand, T. C.; Poon, C. C.; Balamane, H.; Boone, T. D.; Katine, J. A.; Li, J. L.; Rawat, V.; Nemoto, H.; Hirotsune, A. et al. Magnetic recording at 1.5 Pb m^{-2} using an integrated plasmonic antenna. *Nat. Photonics* **2010**, *4*, 484–488.
- [4] Challener, W. A.; Peng, C. B.; Itagi, A. V.; Karns, D.; Peng, W.; Peng, Y. G.; Yang, X. M.; Zhu, X. B.; Gokemeijer, N. J.; Hsia, Y. T. et al. Heat-assisted magnetic recording by a near-field transducer with efficient optical energy transfer. *Nat. Photonics* **2009**, *3*, 220–224.
- [5] Thomas, J. M.; Simpson, E. T.; Kasama, T.; Dunin-Borkowski, R. E. Electron holography for the study of magnetic nanomaterials. *Acc. Chem. Res.* **2008**, *41*, 665–674.
- [6] Masseboeuf, A.; Marty, A.; Bayle-Guillemaud, P.; Gatel, C.; Snoeck, E. Quantitative observation of magnetic flux distribution in new magnetic films for future high density recording media. *Nano Lett.* **2009**, *9*, 2803–2806.
- [7] Kim, J. J.; Hirata, K.; Ishida, Y.; Shindo, D.; Takahashi, M.; Tonomura, A. Magnetic domain observation in writer pole tip for perpendicular recording head by electron holography. *Appl. Phys. Lett.* **2008**, *92*, 162501.
- [8] Hirata, K.; Ishida, Y.; Akashi, T.; Shindo, D.; Tonomura, A. Electron holography study of magnetization behavior in the writer pole of a perpendicular magnetic recording head by a 1 MV transmission electron microscope. *J. Electron Microsc.* **2012**, *61*, 305–308.
- [9] Goto, T.; Jeong, J. S.; Xia, W. X.; Akase, Z.; Shindo, D.; Hirata, K. et al. Electron holography of magnetic field generated by a magnetic recording head. *Microscopy* **2013**, *62*, 383–389.
- [10] Ehrenberg, W.; Siday, R. E. The refractive index in electron optics and the principles of dynamics. *Proc. Phys. Soc. Sect. B* **1949**, *62*, 8–21.
- [11] Aharonov, Y.; Bohm, D. Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory. *Phys. Rev.* **1959**, *115*, 485–491.
- [12] Aharonov, Y.; Bohm, D. Further considerations on electromagnetic potentials in the quantum theory. *Phys. Rev.* **1961**, *123*, 1511–1524.
- [13] Tonomura, A.; Matsuda, T.; Suzuki, R.; Fukuhara, A.; Osakabe, N.; Umezaki, H.; Endo, J.; Shingawa, K.; Sugita, Y.; Fujiwara, H. Observation of Aharonov-Bohm effect by electron holography. *Phys. Rev. Lett.* **1982**, *48*, 1443–1446.
- [14] Snoeck, E.; Gatel, C. *Magnetic Mapping Using Electron Holography in Transmission Electron Microscopy in Micro-nanoelectronics*; Claverie, A., Eds; ISTE Ltd. and John Wiley & Sons Inc.: London, 2012.
- [15] Scholz, W.; Fidler, J.; Schrefl, T.; Suess, D.; Dittrich, R.; Forster, H.; Tsiantos, V. Scalable parallel micromagnetic solvers for magnetic nanostructures. *Comput. Mater. Sci.* **2003**, *28*, 366–383.
- [16] Ladak, S.; Read, D. E.; Perkins, G. K.; Cohen, L. F.; Branford, W. R. Direct observation of magnetic monopole defects in an artificial spin-ice system. *Nat. Phys.* **2010**, *6*, 359–363.
- [17] Zhang, S.; Gilbert, I.; Nisoli, C.; Chern, G. W.; Erickson, M. J.; O’Brien, L.; Leighton, C.; Lammert, P. E.; Crespi, V. H.; Schiffer, P. Crystallites of magnetic charges in artificial spin ice. *Nature* **2013**, *500*, 553–557.



Quantitative 3D electromagnetic field determination of 1D nanostructures from single projection



C. Phatak^{a,*}, L. de Knoop^{b,c}, F. Houdellier^{b,c}, C. Gatel^{b,c}, M.J. Hÿtch^b, A. Masseboeuf^b

^a Materials Science Division, Argonne National Laboratory, Argonne, IL 60439, USA

^b CEMES-CNRS, 29 rue Jeanne Marvig, F-31055 Toulouse, France

^c Université Paul Sabatier, F-31000 Toulouse, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 19 November 2015

Received in revised form

7 March 2016

Accepted 9 March 2016

Available online 10 March 2016

Keywords:

3D electromagnetic fields

1D nanostructures

Phase reconstruction

Transmission electron microscopy

ABSTRACT

One-dimensional (1D) nanostructures have been regarded as the most promising building blocks for nanoelectronics and nanocomposite material systems as well as for alternative energy applications. Although they result in confinement of a material, their properties and interactions with other nanostructures are still very much three-dimensional (3D) in nature. In this work, we present a novel method for quantitative determination of the 3D electromagnetic fields in and around 1D nanostructures using a single electron wave phase image, thereby eliminating the cumbersome acquisition of tomographic data. Using symmetry arguments, we have reconstructed the 3D magnetic field of a nickel nanowire as well as the 3D electric field around a carbon nanotube field emitter, from one single projection. The accuracy of quantitative values determined here is shown to be a better fit to the physics at play than the value obtained by conventional analysis. Moreover the 3D reconstructions can then directly be visualized and used in the design of functional 3D architectures built using 1D nanostructures.

© 2016 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Nanoscale structures, such as ultra-thin films, nanoparticles, and nanowires, have been intensively investigated over the past decade as a result of their novel size-dependant behavior. Among them, one-dimensional (1D) nanostructures such as nanowires and nanotubes are of significant importance as they exhibit molecular scale properties and behavior such as density of states singularities, and emergent charge transport properties [1–3]. These structures also have direct applications as functional nanostructures in nanoelectronics and nanophotonics. The recent progress in fabrication methods has enabled 1D nanostructures to be made from a wide variety of materials including ferromagnetic [4], ferroelectric [5], thermoelectric [6] and semiconductor [7]. In all these 1D nanostructures, it is necessary to quantitatively measure the local properties so that their behavior can be better understood. Moreover, enhancement of some properties such as local electromagnetic fields in 1D nanostructures needs to be quantified, so that it can be controlled for required applications.

In this work we focus on two particular 1D nanostructures: (1) ferromagnetic nanowires, and (2) electrostatically charged carbon nanotips. Ferromagnetic nanowires form an integral part of

existing and novel applications in magnetic storage [8] and sensing [9]. Magnetic nanowires with circular cross-section are of utmost importance from theoretical and technological aspects. Their high aspect ratio and cylindrical symmetry lead to novel domain wall behavior such as suppression of Walker breakdown, which is of interest in magnetic logic circuits and domain wall memory [10,11]. They also have potential applications in single cell bio-sensing [12,13] as well as in nanocomposites for exchange spring magnets [14]. They can be fabricated using a variety of methods such as lithography based templating [15], wet chemical methods and electro deposition [16]. 1D carbon-based nanostructures such as carbon nanotubes are among the best candidates for field emission displays [17] and new high-brightness electron sources [18]. Since their discovery by Iijima [19], carbon nanotubes have been extensively studied and are now used in a wide variety of applications [20,21]. One such application is field emitters because they provide a unique combination of high conductivity, high aspect ratio and robustness [22]. A carbon cone nanotip (CCnT) was recently successfully used in a high-voltage electron gun [23].

The confinement effects in 1D nanostructures can alter their properties and subsequently their behavior significantly. Hence it is necessary to understand the strong effect of their size on their three-dimensional (3D) properties such as the magnetic and electric fields associated with nanowires and nanotubes completely before they can be used in applications. There are a variety of methods to study electromagnetic fields at the nanometer

* Corresponding author.

E-mail address: cd@anl.gov (C. Phatak).

length scale such as scanning tunneling microscopy [4], scanning electron microscopy with polarization analysis (SEMPA) [24], and transmission electron microscopy (TEM) [25–28]. TEM offers the best approach because it can be used to determine their physical/crystal structure, composition as well as to image the electromagnetic field at a high spatial resolution. In particular for Lorentz TEM, the electromagnetic information of the sample is encoded in the phase shift of the electron wave, ϕ , and can be written as a combination of projections of the 3D magnetic vector potential, \mathbf{A} , and 3D electrostatic potential, V , given as [29]:

$$\phi(x, y) = \phi_e(x, y) - \phi_m(x, y) = C_E \int_{-\infty}^{+\infty} V(x, y, z) dz - C_B \int_{-\infty}^{+\infty} A_z(x, y, z) dz \quad (1)$$

where ϕ_e is the electrostatic phase shift, ϕ_m is the magnetic phase shift, $C_E = \pi/E\lambda$, E , the relativistic electron scattering potential and λ , the wavelength of electrons, $C_B = \pi/\Phi_0$, Φ_0 , the magnetic flux quantum and the direction of propagation of the electrons is assumed to be along z . The phase shift can be recovered experimentally using various techniques such as transport-of-intensity based methods or off-axis electron holography. However, from the equations it can be seen that the recovered phase shifts are an integration of the signal over the electron path that yields only projected 2D information. This means that the information from the sample itself is integrated along with the stray field, thereby leading to inaccurate measurements of electromagnetic fields. There are currently very few methods, which have the capability to visualize the complete 3D vector fields associated with nanowires. Nominally, determining the 3D magnetic field requires recording a series of phase shift images as the sample is tilted about its axis. This becomes a tedious and cumbersome process with various sources of error or requires specialized electron microscopes [30,31]. In a 1D nanostructure such as a nanocylinder that is uniformly magnetized along its long axis, the magnetic field possesses cylindrical symmetry with respect to the long axis. In cases, where the 1D nanostructure does not possess cylindrical symmetry, the usual tilt based tomography must be performed to reconstruct the 3D magnetic field [32]. Similarly, carbon nanotubes under applied bias exhibit a cylindrically symmetric potential and electric field. Here we show that the cylindrical symmetry can be exploited to enhance the quantification of electromagnetic properties by recovering the entire 3D vectorial field in and around nanowires and nanotubes from a single image.

2. 3D magnetic field

The magnetic information from the sample is contained in the second term of Eq. (1), ϕ_m , which can be separated using time reversal symmetry, i.e. by recording the phase shift additionally with the sample turned over by 180° and computing the difference between the two phase shifts [33]. Taking the derivative of the magnetic phase shift with respect to x , and using the relation between vector potential and magnetic induction ($\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$) gives:

$$\frac{\partial}{\partial x} \phi(x, y) = C_B \int_{-\infty}^{+\infty} B_y(x, y, z) dz. \quad (2)$$

This equation correlates the projection of one component of the magnetic induction with the magnetic phase shift image. When there is a cylindrically symmetric magnetic induction present, using the inverse Abel transform [34], the y component of the magnetic induction, B_y , can be reconstructed from the phase shift image as:

$$B_y(\rho, y) = -\frac{1}{C_B \pi} \int_{\rho}^{\infty} \frac{\partial^2 \phi(x, y)}{\partial x^2} \frac{dx}{\sqrt{x^2 - \rho^2}}, \quad (3)$$

where $\rho^2 = x^2 + z^2$. A detailed derivation of the inverse Abel transform is presented in the Supporting information. It should be noted that using the above equation provides the y component of all magnetization vectors in 3D. Furthermore, using the divergenceless condition $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ in cylindrical coordinates, B_ρ can be calculated as:

$$B_\rho(\rho, y) = -\frac{1}{\rho} \int_{\rho}^{\infty} \rho' \frac{\partial B_y(\rho', y)}{\partial y} d\rho', \quad (4)$$

the x and z components of the magnetic induction being obtained as $(B_x, B_z) = (B_\rho \cos \theta, B_\rho \sin \theta)$.

The numerical implementation of the reconstruction procedure was done using the Interactive Data Language (IDL) and was tested by reconstructing the magnetic induction of a uniformly magnetized spherical nanoparticle as the analytical expression for this case is well known. The simulations were performed using a 256×256 pixel grid with a resolution of 1 nm per pixel. The magnetic induction of such a sphere has cylindrical symmetry about the axis of the magnetization vector [35], which here is assumed to be lying in the x - y plane. The computations were performed for a uniformly magnetized sphere of radius, $R = 16$ nm, $B_0 = 1.0$ T, and magnetization unit vector given by $[0, 1, 0]$. The magnetic phase shift of such a sphere was numerically computed using the analytical expression given in the paper by De Graef et al. [36]. Fig. 1(a) shows the simulated magnetic phase shift image of the spherical nanoparticle. Fig. 1(b) shows the derivative of the magnetic phase shift with respect to the x -axis (horizontal axis of the image) required for reconstruction (Eq. (2)). The symmetry about the y -axis of the image (vertical axis) in the derivative image can be clearly observed. This image was then used for numerical implementation of Eq. (3) to reconstruct the complete 3D magnetic induction inside and outside the spherical nanoparticle shown in Fig. 1(c). The inverse Abel transform was computed using the modified Fourier–Hankel algorithm described by Ma et al. [37]. The B_ρ component was then calculated by numerically implementing Eq. (4) in polar coordinates. The numerical integration was performed using the 5-point Newton–Cotes integration formula. The vector quantities, B_y and B_ρ as well as the scalar potential, V , were then interpolated from polar coordinates to Cartesian coordinates. The color of the arrows indicates the magnitude of the y component of the magnetic induction with respect to the color bar, in units of T. The main advantage of this method, as illustrated in Fig. 1, is that it can be directly used to quantitatively map the 3D magnetic induction, which leads to a better quantification of magnetic induction within the nanoparticle by eliminating the effect of surrounding stray fields. This can yield a more thorough understanding of the strength of magnetic interactions between spherical magnetic nanoparticles that can be useful for the self-assembly process. Additional comparisons as well as systematic errors analysis can be found in the Supplementary material.

3. 3D electric field

The electrostatic information from the sample is similarly contained in the first term of Eq. (1), ϕ_e . This term contains the contribution due to the charge density in the sample resulting from the applied bias as well as the mean inner potential (MIP) of the sample. The MIP can be assumed to be constant inside the sample, and hence its contribution to the electrostatic phase shift

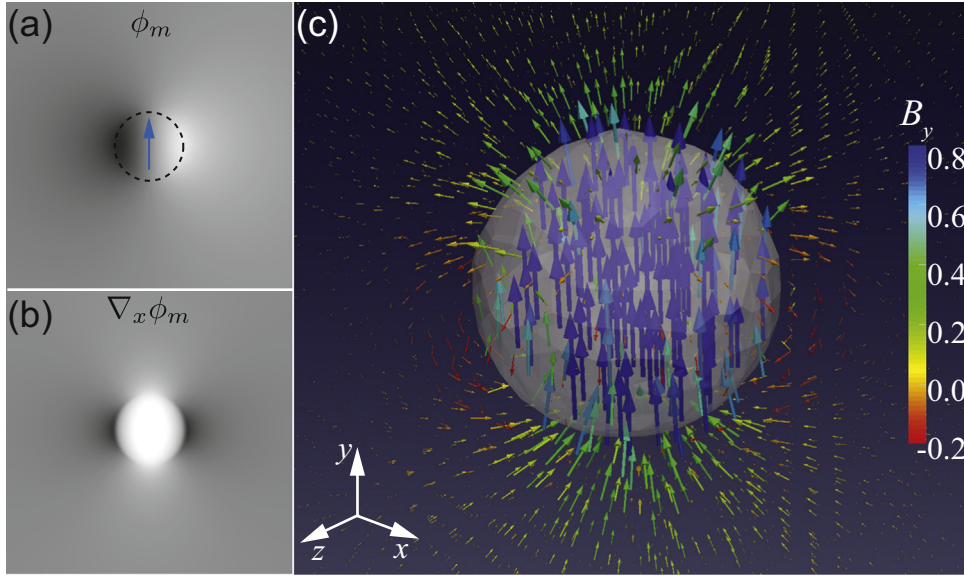


Fig. 1. (a) shows the magnetic phase shift image of a uniformly magnetized spherical nanoparticle, indicated by the dashed line, and magnetization vector is indicated by the blue arrow, (b) the derivative of the magnetic phase shift with respect to x showing the symmetry about the vertical axis of the image, and (c) the 3D reconstructed magnetic induction inside and outside the spherical particle. The color bar shows the magnitude of the y component of the magnetic induction, B_y , in T. (For interpretation of the references to color in this figure caption, the reader is referred to the web version of this paper.)

depends only on the sample's thickness variation. This contribution can be eliminated by computing the difference between phase shifts of unbiased and biased samples. Resulting phase shift, $\phi_{e,q}$, due to only the charge density can then be written as:

$$\phi_{e,q}(x, y) = C_E \int_{-\infty}^{\infty} V_q(x, y, z) dz, \quad (5)$$

where V_q represents the potential due to the charge density in the biased sample. For a sample with cylindrically symmetric potential, and assuming that the sample is oriented such that the axis of symmetry is along the y -axis, inverse Abel transform can be used to reconstruct the 3D electrostatic potential as:

$$V_q(\rho, y) = -\frac{1}{C_E \pi} \int_{\rho}^{\infty} \left(\frac{\partial \phi_{e,q}(x, y)}{\partial x} \right) \frac{dx}{\sqrt{x^2 - \rho^2}}. \quad (6)$$

The electric field of the sample can then be computed numerically using the relation $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\vec{\nabla}V$, where $\vec{\nabla}$ is the gradient operator in 3D.

4. Results

Magnetic nanowire: Magnetic nanowires with circular cross section which are uniformly magnetized along their long axis also possess cylindrically symmetric magnetic induction. Similar to the case of the uniformly magnetized nanosphere, it is possible to compute the complete 3D magnetic field of such a nanowire using a single phase image. Experiments were performed on a polycrystalline nickel (Ni) nanowire of 75 nm diameter [16]. The nickel nanowires were grown by electro deposition in commercial 6 μm thick polycarbonate membranes. The membranes were then

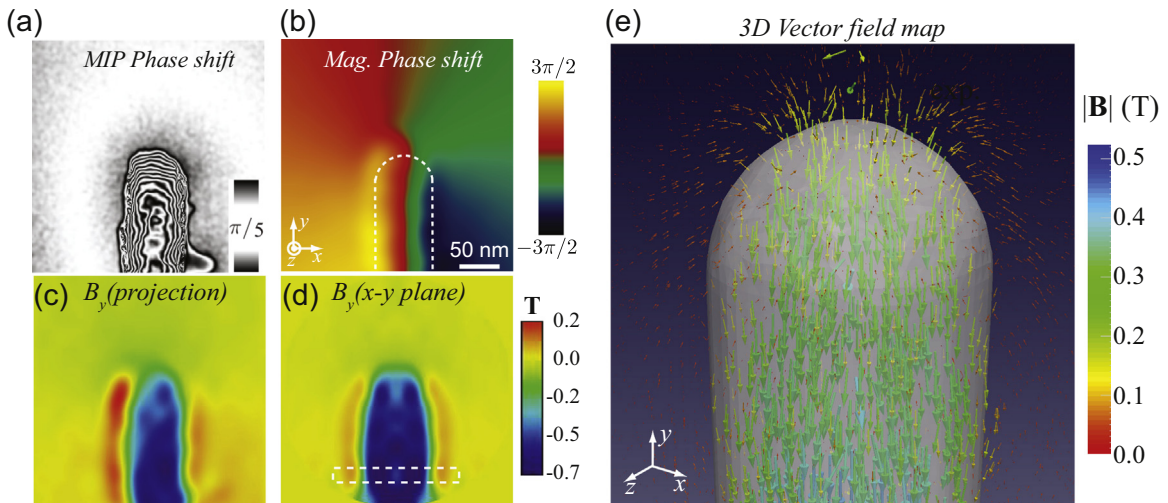


Fig. 2. (a) shows the electrostatic contribution to the phase shift displayed as $\cos(5\Delta\phi)$ of the nickel nanowire. The associated scale displays the amount of ϕ_e between dark lines (b) showing the magnetic contribution to the phase shift (ϕ_m). (c) shows the B_y component calculated from the gradient of magnetic phase shift, and (d) shows the B_y component in the $x-y$ plane in the middle of the nanowire. The color represents the strength of magnetic induction indicated by the colorbar. (e) shows the 3D vector plot of the reconstructed magnetic induction from the nanowire. The vectors are colored according to the y component of the induction indicated by the color bar (in units of T). (For interpretation of the references to color in this figure caption, the reader is referred to the web version of this paper.)

dissolved in CH_2Cl_2 , and the Ni nanowires were recovered on a carbon foil for TEM imaging. Only the region near the extremity of the nanowire was used for reconstruction such that information about the magnetic field within the nanowire can be acquired along with the stray fields.

Fig. 2(a) and (b) shows the experimental electrostatic and magnetic phase shifts of the nanowire. The phase shift was recovered using off-axis electron holography in a FEI Tecnai F20 TEM operating at 200 kV using the first transfer lens of the Cs-corrector as a Lorentz lens. The magnetic phase shift was obtained from the Ni nanowire by recording the phase shift images with the sample as-is and rotating it by 180° about its axis and then subtracting the two phase shifts. The mean inner potential (MIP) contribution to the phase shift gives an overview of the shape of the wire. Moreover, a weak electric field in vacuum can be seen due to charging effect on the nanowire giving us high confidence into the separation of the two phase shifts. The magnetic phase image was then used to perform the numerical reconstruction of the 3D magnetic field. The experimental reconstructions were performed on a 256^3 grid. Fig. 2(c) shows the conventional approach of estimating magnetic induction in the nanowire using the relation, $B_{\text{proj}} = \nabla\phi_m/C_B t$, computed from the gradient of the phase shift and dividing by the thickness, t of the sample, derived from the MIP. With the same phase data, now we can reconstruct the entire 3D magnetic field. A vectorial view of the reconstruction can thus be displayed (Fig. 2(e)) to emphasize the vectorial 3D nature of the new dataset. Moreover we can visualize and measure the magnetic induction in the $x-y$ plane in the middle of the nanowire as shown in Fig. 2(d).

Such slicing capability is the main advantage of our method as we can obtain more precise estimate of the magnetic saturation in the nanowire as shown in Fig. 3. The conventional integrative approach (Fig. 2(c)) typically does not account for the integration of the stray fields outside the nanowire leading to an inaccurate quantification of the magnetic saturation of the material. This is schematically shown in Fig. 3(a) where the stray fields are shown in the plane above the nanowire, the true magnetic induction of the sample is measured in the mid-plane of the nanowire, and the measured magnetic induction in the projected plane is the integration of these values. The $\mu_0 M_s$ is now measured as 0.7 ± 0.1 T as compared to the 0.5 ± 0.1 T value obtained from the conventional phase gradient method as shown by the lineplots in Fig. 3(b). It worth noting that this new experimental value for magnetic saturation of Ni was the one that was found to best fit micro-magnetic simulations performed for domain wall studies in Ni nanowires [16]. The underestimation due to stray field contribution is eliminated in our measurements. It is however limited to

the extent of the reconstruction volume. The strong decrease of the field away from the nanowire ($1/r^3$) versus the size of the reconstruction volume ($\sim 286 \text{ nm}^3$) is sufficient to assume the complete removal of the stray field versus our sensitivity. The only remaining source of error in the quantification comes from the perturbed reference wave used for performing holographic phase reconstruction. The experimental induction map suffers slightly from a noisy phase reconstruction which is caused due to the strong diffraction contrast from the polycrystalline Ni nanowire. A Savitzky–Golay differentiation filter [38] was used to minimize the effect of this noise.

Charged nanotube: There is intense interest in exploring carbon nanostructures for high efficiency field emitter applications: in particular carbon nanotubes and their derivatives. When an electrical bias is applied to a carbon nanotube, charge builds up on the surface, which is proportional to the applied bias until field emission occurs. The cylindrical geometry of the nanotubes results in a cylindrically symmetric charge distribution and potential. It is possible to measure the effect of such a potential by measuring the resulting phase shift using off-axis electron holography. Here we have used the single image method developed in this work to determine the 3D potential around the charge distribution as well as to obtain the 3D electric field around the carbon nanotube.

Experiments were performed on carbon cone nanotip (CCnT) using an in situ TEM holder (Nanofactory Instruments), in which the CCnT was exposed to an applied bias and the phase shift was measured using off-axis holography [39] (Fig. 4(a)). The carbon cone nanotips (CCnTs) were prepared by deposition of pyrolytic carbon onto a multi-wall carbon nanotube. The CCnTs were then mounted on a tungsten tip using a dual Focused Ion Beam/FEG Scanning Electron Microscope (FIB/SEM). Fig. 4(b) shows the phase image of the CCnT under an applied bias of 60 V. The contours are drawn every π radians. Fig. 4(c) shows the 3D distribution of the reconstructed potential along with contours drawn every 10 V associated with the CCnT (shown in gray). The color bar shows the magnitude of the potential in volts. The reconstructed 3D potential from the CCnT was then used to compute the 3D electric field as shown in Fig. 5.

Fig. 5 (a) shows the conventional approach for estimating the electric field from the phase shift, similar to that for magnetic induction by computing the gradient of the phase shift. This method again represents an integrated measurement of the electric field that leads in that case to an overestimation of the measurement due to stray fields. Fig. 5(b) shows the reconstructed electric field in the $x-y$ plane in the middle of the CCnT obtained using our method. Fig. 5(c) shows the quantitative comparison of the electric field as measured from the projection and in the

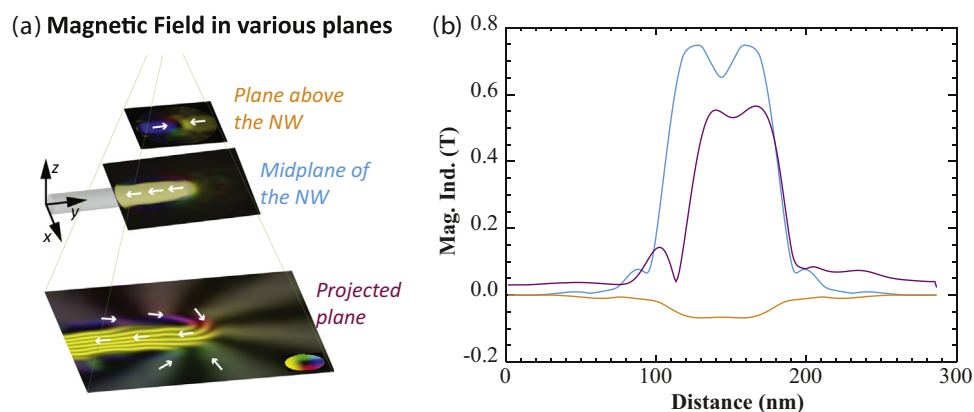


Fig. 3. (a) shows a schematic to illustrate the advantage of our method by showing the magnetic induction that can be measured at various locations in 3D as opposed to the projected magnetic induction, and (b) shows the quantitative comparison of the magnetic induction at various locations represented in (a) from the white dashed region shown in Fig. 2(d). (For interpretation of the references to color in this figure caption, the reader is referred to the web version of this paper.)

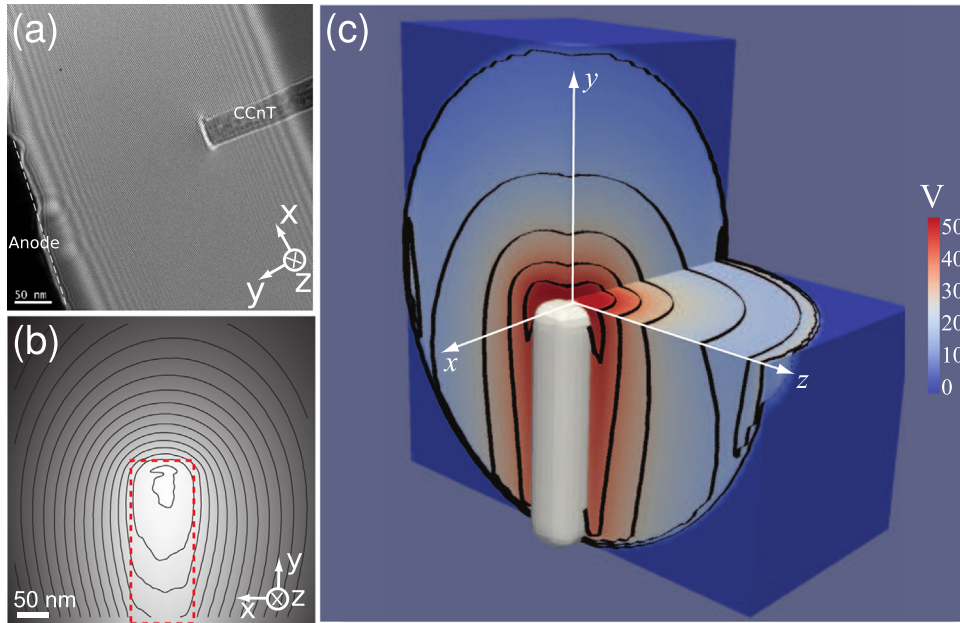


Fig. 4. (a) shows the as-acquired interference hologram, which shows the positions of the CCnT and the anode. (b) shows the experimentally measured phase shift from a carbon cone nanotip (CCnT) under an applied bias of 60 V, (c) shows the reconstructed 3D distribution of potential (in V) around the CCnT along with contours drawn every 10 V. (For interpretation of the references to color in this figure caption, the reader is referred to the web version of this paper.)

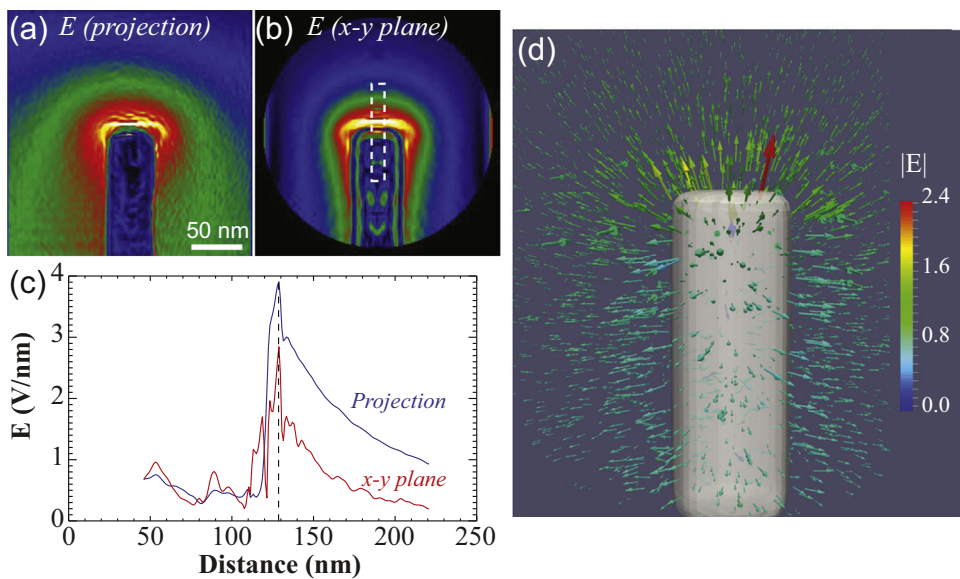


Fig. 5. (a) shows reconstructed electric field in the projection plane computed from gradient of the phase shift, and (b) shows the reconstructed electric field in the x - y plane in the middle of the CCnT. (c) shows the quantitative comparison of the reconstructed electric field in the projection plane and the x - y plane in the middle of the CCnT. (d) shows the 3D vectorial view of the reconstructed electric field (in V/nm) around the CCnT. (For interpretation of the references to color in this figure caption, the reader is referred to the web version of this paper.)

middle of the CCnT, with the vertical dashed line showing the edge of the CCnT. Similar to the magnetic saturation measurement, here too, we can see that we have more accurate estimate of the electric field at the apex of the CCnT since we are removing the effect of field outside the CCnT. Fig. 5(d) shows the 3D vector field plot of the electric field in and around the CCnT, with the arrows colored according to the magnitude of the electric field in units of V/nm as shown by the colorbar. The quantitative analysis of such a biased CCnT field emission process is rather easy as a direct local electric field can be instantly measured with better accuracy. We were thus able to measure an electric field of $2 \pm 0.5 \text{ V nm}^{-1}$ at the extremity of the CCnT. Accurate measurement of this value is of importance as it enables the estimation of the field enhancement

factor [40] that is used for Fowler–Nordheim plot analysis and work function estimation of carbon nanotubes. Knowing this value as well as the applied electrical bias and anode–CCnT distance, one can estimate a field enhancement value of $\gamma = 23 \pm 6$ which is consistent with the one estimated using finite element modeling [39]. The estimation here is once again only limited by the disturbed reference wave that causes a lowering of the measured electric potential in the image.

5. Discussion

The primary requirement for this method is that the field should be cylindrically symmetric. This necessitates that the axis

of symmetry in the phase image is accurately determined prior to the 3D reconstruction of the field. However, experimental limitations, such as low spatial resolution or a magnetization distribution that is not completely symmetric, may prevent the accurate determination of the axis of symmetry. Furthermore, other experimental limitations such as the biprism orientation being not exactly perpendicular to the long axis of the 1D nanostructure can also introduce error in preserving cylindrical symmetry in the reconstruction. It is also true for the determination of the 3D electric potential and field. For example, the magnetization of a uniformly magnetized nanosphere can have a z -component but depending on the direction of projection, the phase shift may appear to be cylindrically symmetric. Another possibility is that the magnetization can be in a 'S' or 'C' state such that at the edge of the particle, it rotates in plane, thus leading to incomplete cylindrical symmetry. In order to assess the effect of variation in symmetry and possible errors in determining the symmetric axis, the magnetization of the spherical nanoparticle was rotated by an angle θ varying from 0° to 20° about the y -axis in the x - y plane. The phase shift was then computed for the corresponding magnetization. However, while implementing and performing the 3D reconstruction of the magnetic induction, the symmetric axis was assumed to be along y -axis. The 3D magnetic induction was then reconstructed using the single image method and compared with the true 3D magnetic induction calculated analytically. Of particular importance and relevance is the axial field magnitude (B_y) that was compared numerically: for example the theoretical and reconstructed value of axial field at the tip of the sphere is 0.66 T and 0.63 T for $\theta = 0$ and decreases to 0.62 T and 0.59 T for $\theta = 20^\circ$ respectively. This corresponds to only about 5% error. Similarly the error in the angle of the magnetization vector was also compared. The comparison showed that the error in determination of the angle of the magnetization vector is smaller inside the nanosphere than outside. This can be related to the fact that outside the nanosphere, the magnetization vector changes direction rapidly as compared to the magnetization vector inside the sphere. Additional details about the calculation of errors and a rigorous quantitative comparison of errors is given in the supporting information. The final source of error in the quantitative measurement of the electromagnetic fields using our method is due to the perturbed reference wave. However, it has been shown previously that the reference wave perturbation at the length scale of the overlap area is not significant with error below 10% [39,41]. This demonstrates that although the condition of cylindrical symmetry is a fairly strict criterion for applicability of this method, for experimental purposes, this method can still reliably give quantitative values of magnetic induction or electric field in and around the nanostructures in 3D.

Finally, other approaches that quantitatively measure electromagnetic fields using phase reconstructed electron microscopy apart from tomographic methods rely on building models of the sample either through finite element simulations or analytical models and then compare the experimental 2D measurements with the results obtained from the models. Recent work by Beleggia et al. has used this approach to show that using off-axis holography combined with theoretical modeling, it is possible to quantitatively measure the electric field around the tip of a biased needle and accurately take into account the shape of the tip [42]. However, the method presented in this work is unique in that it relies on experimental measurements to directly reconstruct the 3D electromagnetic fields.

6. Conclusion

Here we have successfully demonstrated that by exploiting the cylindrical symmetry of 1D nanostructures and the associated

electromagnetic fields, it is indeed possible to reconstruct the entire 3D electromagnetic field from a single TEM phase image. This significantly reduces the time required to acquire multiple tilt series images as well as reducing the electron dose to the sample that is conventionally required for 3D reconstruction. The method was numerically implemented to reconstruct the 3D magnetic induction in and around a ferromagnetic nickel nanowire as well as the electric field in and around a carbon cone nanotip under applied bias. In both the cases, we have shown that using the information obtained in 3D, we can get more precise measurement of relevant physical quantities such as magnetic saturation, or field enhancement factors as compared to conventional approaches. This work opens new paths for quantitative analysis of the 3D electromagnetic interactions for technologically important one-dimensional nanostructures.

Acknowledgments

Work by C.P. was supported by the U.S. Department of Energy (DOE), Office of Science, Materials Sciences and Engineering Division. A.M. and C.G. are supported by the French national project EMMA (ANR12 BS10 013 01). A.M., C.G., L.K. and M.H. acknowledge the European Union under the Seventh Framework Programme under a contract for an Integrated Infrastructure Initiative Reference 312483-ESTEEM2 as well as the French National Research Agency under the "Investissement d'Avenir" Program reference no. ANR-10-EQPX-38-01 and the "Conseil Regional Midi-Pyrénées" and the European FEDER for financial support within the CPER program. A.M. and C.P. acknowledge support by Université Paul Sabatier (APC programme) for funding the venue of C.P. at CEMES laboratory.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data associated with this paper can be found in the online version at <http://dx.doi.org/10.1016/j.ultramic.2016.03.005>.

References

- [1] C.M. Lieber, One-dimensional nanostructures: chemistry, physics & applications, *Solid State Commun.* 107 (11) (1998) 607–616, [http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1098\(98\)00209-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1098(98)00209-9) <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0038109898002099>.
- [2] Y. Xia, P. Yang, Y. Sun, Y. Wu, B. Mayers, B. Gates, Y. Yin, F. Kim, H. Yan, One-dimensional nanostructures: synthesis, characterization, and applications, *Adv. Mater.* 15 (5) (2003) 353–389, <http://dx.doi.org/10.1002/adma.200390087> <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/adma.200390087/abstract>.
- [3] S.V. Kuchibhatla, A. Karakoti, D. Bera, S. Seal, One dimensional nanostructured materials, *Prog. Mater. Sci.* 52 (5) (2007) 699–913, <http://dx.doi.org/10.1016/j.pmatsci.2006.08.001> <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079642506000417>.
- [4] M. Pratzner, H. Elmers, M. Bode, O. Pietzsch, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, Atomic-scale magnetic domain walls in quasi-one-dimensional Fe nanostripes, *Phys. Rev. Lett.* 87 (12) (2001) 127201, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.127201> <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.87.127201>.
- [5] P.M. Rørvik, T. Grande, M.-A. Einarsson, One-dimensional nanostructures of ferroelectric perovskites, *Adv. Mater.* (Deerfield Beach, FL) 23 (35) (2011) 4007–4034, <http://dx.doi.org/10.1002/adma.201004676> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/21796684>.
- [6] A.I. Boukai, Y. Bunimovich, J. Tahir-Kheli, J.-K. Yu, W.A. Goddard III, J.R. Heath, Silicon nanowires as efficient thermoelectric materials, *Nature* 451 (7175) (2008) 168–171.
- [7] T. Zhai, L. Li, X. Wang, X. Fang, Y. Bando, D. Golberg, Recent developments in one-dimensional inorganic nanostructures for photodetectors, *Adv. Funct. Mater.* 20 (24) (2010) 4233–4248, <http://dx.doi.org/10.1002/adfm.201001259> <http://doi.wiley.com/10.1002/adfm.201001259>.
- [8] C. Chappert, A. Fert, F.N. Van Dau, The emergence of spin electronics in data storage, *Nat. Mater.* 6 (11) (2007) 813–823, <http://dx.doi.org/10.1038/nmat2024> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/17972936>.

- [9] D.A. Allwood, G. Xiong, C.C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, R.P. Cowburn, Magnetic domain-wall logic, *Science* 309 (5741) (2005) 1688–1692, <http://dx.doi.org/10.1126/science.1108813> (New York, NY) <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/16151002>.
- [10] M. Hayashi, L. Thomas, R. Moriya, C. Rettner, S.S.P. Parkin, Current-controlled magnetic domain-wall nanowire shift register, *Science* 320 (5873) (2008) 209–211, <http://dx.doi.org/10.1126/science.1154587> (New York, NY) <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/18403706>.
- [11] A. Brataas, A. Kent, H. Ohno, Current-induced torques in magnetic materials, *Nat. Mater.* 11, 372–381 (2012), <http://dx.doi.org/10.1038/nmat3311>.
- [12] D.L. Graham, H.A. Ferreira, P.P. Freitas, Magneto-resistive-based biosensors and biochips, *Trends Biotechnol.* 22 (9) (2004) 455–462, <http://dx.doi.org/10.1016/j.tibtech.2004.06.006> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/15331226>.
- [13] H.-T. Huang, T.-R. Ger, Y.-H. Lin, Z.-H. Wei, Single cell detection using a magnetic zigzag nanowire biosensor, *Lab Chip* 13 (15) (2013) 3098–3104, <http://dx.doi.org/10.1039/c3lc50457c> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/23752134>.
- [14] J.S. Jiang, S.D. Bader, Rational design of the exchange-spring permanent magnet, *J. Phys.: Condens. Matter: Inst. Phys. J.* 26 (6) (2014) 064214, <http://dx.doi.org/10.1088/0953-8984/26/6/064214> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/24469386>.
- [15] N. Winkler, J. Leuthold, Y. Lei, G. Wilde, Large-scale highly ordered arrays of freestanding magnetic nanowires, *J. Mater. Chem.* 22 (32) (2012) 16627, <http://dx.doi.org/10.1039/c2jm33224h> <http://xlink.rsc.org/?DOI=c2jm33224h>.
- [16] N. Biziere, C. Gatel, R. Lassalle-Balier, M.C. Clochard, J.E. Wegrowe, E. Snoeck, Imaging the fine structure of a magnetic domain wall in a Ni nanocylinder, *Nano Lett.* 13 (5) (2013) 2053–2057, <http://dx.doi.org/10.1021/nl400317j> <http://www.pubmedcentral.nih.gov/articlerender.fcgi?artid=3650658&tool=pmcentrez&rendertype=abstract>.
- [17] N.S. Lee, D.S. Chung, I.T. Han, J.H. Kang, Y.S. Choi, H.Y. Kim, S.H. Park, Y.W. Jin, W.K. Yi, M.J. Yun, J.E. Jung, C.J. Lee, Y., S.H. Jo, C.G. Lee, J.M. Kim, Application of carbon nanotubes to field emission displays, *Diamond Relat. Mater.* 10 (2) (2001) 265–270, [http://dx.doi.org/10.1016/S0925-9635\(00\)00478-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0925-9635(00)00478-7), <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TWV-42FS2BN-T/2/7bb5930e448990ace9656d927b8390e>.
- [18] N. de Jonge, Y. Lamy, K. Schoots, T.H. Oosterkamp, High brightness electron beam from a multi-walled carbon nanotube, *Nature* 420 (6914) (2002) 393–395, <http://dx.doi.org/10.1038/nature01233>.
- [19] S. Iijima, Helical microtubules of graphitic carbon, *Nature* 354 (6348) (1991) 56–58, <http://dx.doi.org/10.1038/354056a0>.
- [20] Monthieux, M. (ed), Carbon Meta-Nanotubes: Synthesis, Properties and Applications, John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK (2011), <http://dx.doi.org/10.1002/9781119954743>.
- [21] R.H. Baughman, A.A. Zakhidov, W.A.d. Heer, Carbon nanotubes—the route toward applications, *Science* 297 (5582) (2002) 787–792, <http://dx.doi.org/10.1126/science.1060928>, PMID: 12161643, <http://www.sciencemag.org/content/297/5582/787>.
- [22] A.V. Eletskii, Carbon nanotube-based electron field emitters, *Physics—Uspekhi* 53 (9) (2010) 863, <http://dx.doi.org/10.3367/UFNe.0180.201009a.0897> <http://iopscience.iop.org/1063-7869/53/9/R01>.
- [23] F. Houdellier, A. Masseur, M. Monthieux, M.J. Hÿtch, New carbon cone nanotip for use in a highly coherent cold field emission electron microscope, *Carbon* 50 (5) (2012) 2037–2044, <http://dx.doi.org/10.1016/j.carbon.2012.01.023> <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0008622312000541>.
- [24] S.-H. Chung, R.D. McMichael, D.T. Pierce, J. Unguris, Phase diagram of magnetic nanodisks measured by scanning electron microscopy with polarization analysis, *Phys. Rev. B* 81 (2) (2010) 024410, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.81.024410>.
- [25] C. Phatak, A. Petford-Long, O. Heinonen, M. Tanase, M. De Graef, Nanoscale structure of the magnetic induction at monopole defects in artificial spin-ice lattices, *Phys. Rev. B* 83 (17) (2011) 174431, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.174431>.
- [26] C. Gatel, A. Lubk, G. Pozzi, E. Snoeck, M. Hÿtch, Counting elementary charges on nanoparticles by electron holography, *Phys. Rev. Lett.* 111 (2) (2013) 025501, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.025501>.
- [27] D. Shindo, Y. Murakami, Electron holography study of electric field variations, *J. Electron Microsc.* 60 (Supplement 1) (2011) S225–S237, <http://dx.doi.org/10.1093/jmicro/dfi017> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/21844592>.
- [28] J. Cumings, A. Zettl, M.R. McCartney, J.C.H. Spence, Electron holography of field-emitting carbon nanotubes, *Phys. Rev. Lett.* 88 (5) (2002) 056804, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.056804>.
- [29] Y. Aharonov, D. Bohm, Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory, *Phys. Rev.* 115 (3) (1959) 485–491.
- [30] A. Lubk, D. Wolf, P. Simon, C. Wang, S. Sturm, C. Felser, Nanoscale three-dimensional reconstruction of electric and magnetic stray fields around nanowires, *Appl. Phys. Lett.* 105 (17) (2014) 173110, <http://dx.doi.org/10.1063/1.4900826> <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/105/17/10.1063/1.4900826>.
- [31] T. Tanigaki, Y. Takahashi, T. Shimakura, T. Akashi, R. Tsuneta, A. Sugawara, D. Shindo, Three-dimensional observation of magnetic vortex cores in stacked ferromagnetic discs, *Nano Lett.* 15(2), 1309–1314 (2015), <http://dx.doi.org/10.1021/nl504473a>.
- [32] D. Wolf, L.A. Rodriguez, A. Béché, E. Javon, L. Serrano, C. Magen, C. Gatel, A. Lubk, H. Lichte, S. Bals, G. Van Tendeloo, A. Fernández-Pacheco, J.M. De Teresa, E. Snoeck, 3D Magnetic induction maps of nanoscale materials revealed by electron holographic tomography, *Chem. Mater.* 27 (19) (2015) 6771–6778, <http://dx.doi.org/10.1021/acs.chemmater.5b02723>.
- [33] R.E. Dunin-Borkowski, T. Kasama, A. Wei, S.L. Tripp, M.J. Hÿtch, E. Snoeck, R. J. Harrison, A. Putnis, Off-axis electron holography of magnetic nanowires and chains, rings, and planar arrays of magnetic nanoparticles, *Microsc. Res. Techn.* 64 (5–6) (2004) 390–402.
- [34] J. Tatum, W. Jaworski, A solution of Abel's equation, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 38 (4) (1987) 319–322 <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022407387900768>.
- [35] J.D. Jackson, Classical Electrodynamics, 3rd ed., Wiley, New York, 1999 <http://www.loc.gov/catdir/description/wiley033/97046873.html>.
- [36] M. De Graef, N. Nuhfer, M. McCartney, Phase contrast of spherical magnetic particles, *J. Microsc.* 194 (1) (1999) 84.
- [37] S. Ma, H. Gao, L. Wu, Modified Fourier–Hankel method based on analysis of errors in Abel inversion using Fourier transform techniques, *Appl. Opt.* 47 (9) (2008) 1350–1357 <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/18709083>.
- [38] A. Savitzky, M. Golay, Smoothing and differentiation of data by simplified least squares procedures, *Anal. Chem.* 36 (8) (1964) 1627–1639 <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ac60214a047>.
- [39] L. de Knoop, F. Houdellier, C. Gatel, A. Masseur, M. Monthieux, M. Hÿtch, Determining the work function of a carbon-cone cold-field emitter by in situ electron holography, *Micron* 63 (2014) 2–8, <http://dx.doi.org/10.1016/j.micron.2014.03.005> <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0968432814000547>.
- [40] J.-M. Bonard, M. Croci, I. Arfaoui, O. Noury, D. Sarangi, A. Châtelain, Can we reliably estimate the emission field and field enhancement factor of carbon nanotube film field emitters? *Diamond Relat. Mater.* 11 (3–6) (2002) 763–768, [http://dx.doi.org/10.1016/S0925-9635\(01\)00541-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0925-9635(01)00541-6) <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0925963501005416>.
- [41] J.F. Einsle, C. Gatel, A. Masseur, R. Cours, M.A. Bashir, M. Gubbins, R. M. Bowman, E. Snoeck, In situ electron holography of the dynamic magnetic field emanating from a hard-disk drive writer, *Nano Res.* 8 (4) (2014) 1241–1249, <http://dx.doi.org/10.1007/s12274-014-0610-0>.
- [42] M. Beleggia, T. Kasama, D.J. Larson, T.F. Kelly, R.E. Dunin-Borkowski, G. Pozzi, Towards quantitative off-axis electron holographic mapping of the electric field around the tip of a sharp biased metallic needle, *J. Appl. Phys.* 116, 024305 (2014), <http://dx.doi.org/10.1063/1.4887448>.

Résumé

Ce travail présente mes travaux autour de la microscopie électronique en transmission et plus particulièrement de l'holographie électronique. L'apport des techniques de nanofabrication ont permis de faire progresser la microscopie *in situ* vers une quantification à l'échelle nanométrique avec de nouvelles sensibilités. L'ouverture des mesures à la fréquence excitatrice ou à la 3^e dimension durant les expériences offrent par exemple un gain exhaustif et quantitatif dans la caractérisation physique offerte par la microscopie *in situ*. Ces travaux ont permis le développement d'une nouvelle source électronique de forte brillance basée sur les nanostructures de carbone. Dans ce cadre, des avancées sur la caractérisation de nanotubes dopés, remplis ou décorés ont été obtenues via l'holographie à basse tension. L'apport dans le domaine du micromagnétisme des travaux présentés ici concerne l'analyse dynamique de systèmes $1D$ et l'analyse du déplacement, du piégeage et de la modification des parois de domaines magnétiques. Les contributions de ces travaux aux techniques de nanofabrication couvrent un spectre large allant du dépôt localisé à la nano-manipulation en passant par la lithographie ionique et l'ingénierie de systèmes transparents aux électrons. Enfin, de nombreux développements instrumentaux ont permis de développer une approche de la mesure physique en étroite corrélation avec la nano-caractérisation, tout en proposant une formation à large spectre d'étudiants au métier de la Recherche.