



**HAL**  
open science

# Study of Pt/Co system. From growth to magnetism and spin electronics

Sylvain Eimer

► **To cite this version:**

Sylvain Eimer. Study of Pt/Co system. From growth to magnetism and spin electronics. Condensed Matter [cond-mat]. Sorbonne Université, 2023. English. NNT : 2023SORUS526 . tel-04511700

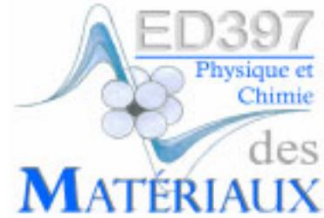
**HAL Id: tel-04511700**

**<https://theses.hal.science/tel-04511700>**

Submitted on 19 Mar 2024

**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.



# Sorbonne Université

Ecole doctorale 397

Physique et Chimie des Matériaux

## **Etude du système Pt/Co**

*De la croissance au magnétisme et à l'électronique de spin*

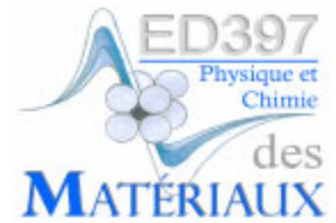
Par Sylvain Roger EIMER

Thèse de doctorat de Physique

Présentée et soutenue publiquement le 06/09/2023

Devant un jury composé de :

- Dr Jon GORCHON, Rapporteur
- Pr Silviu COLIS, Rapporteur
- Dr Michel VIRET, Examineur
- Pr Michel HEHN, Examineur
- Pr. Nadine WITKOWSKI, Directrice de l' école doctorale ED397
- Dr Yunlin Jacques ZHENG, accompagnateur scientifique
- Mme France UEBERSFELD, accompagnatrice pédagogique
- Mme Roselyne FRIEDENBERG, Responsable de la Formation Continue



# Dossier de VAE pour l'obtention d'un doctorat

École Doctorale 397 Chimie et Physique des  
matériaux de Sorbonne Université

EIMER Sylvain Roger

Juin2023

Accompagnatrice Pédagogique :

Mme UEBERSFELD France

Accompagnateur Scientifique :

Dr ZHENG Yunling Jacques

## Introduction Générale

En France il y a plusieurs chemins qui mènent au doctorat. La voie habituelle est de suivre le parcours universitaire (licence, maîtrise, doctorat) jusque l'obtention du doctorat.

Néanmoins, depuis plusieurs années une innovante méthode afin d'obtenir ces diplômes (par exemple le doctorat) est la Validation, d'Acquis et d'Expériences (VAE). Elle permet de donner la chance aux personnes ayant rentrées tôt dans le monde professionnel et évoluées tout au long de leurs carrières de faire valoir leurs acquis par un diplôme.

J'ai donc souhaité prendre cette opportunité pour valider mes acquis issus de mes expériences.

Dans la première partie de ce manuscrit j'argumenterai et expliquerai **mes motivations** pour obtenir ce doctorat et le choix du doctorat (doctorat de physique à Sorbonne Université, **Ecole Doctorale Physique & Chimie des matériaux (ED 397)**).

Dans cette partie également, j'expliquerai comment je me suis construit en tant que chercheur en me formant à la recherche par la recherche et comment se sont élaborées mes thématiques de recherches.

Enfin je démontrerai ma capacité à mener un projet de recherche original et à en valoriser les résultats par le biais d'un retour d'expérience scientifique présenté sous la forme d'un manuscrit de thèse sur l'étude du système Pt/Co, de la croissance au magnétisme et à l'électronique de spin.

## Sommaire

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction Générale .....</b>  | <b>2</b>  |
| <b>Argumentations et motivations de la demande.....</b>                             | <b>7</b>  |
| <b>Curriculum Vitae.....</b>  | <b>9</b>  |
| <b>Retour réflexif sur mon parcours professionnel.....</b>                          | <b>16</b> |
| <b>I. introduction.....</b>   | <b>16</b> |
| <b>II. Un début de carrière atypique. ....</b>                                      | <b>16</b> |
| <b>III. mon parcours en immersion dans le monde scientifique et technique .....</b> | <b>17</b> |
| <b>IV. D'ingénieur à chercheur.....</b>   | <b>20</b> |
| <b>V. Bilan et conclusion.....</b>  | <b>21</b> |
| <b>Retour d'expérience Scientifique .....</b>                                       | <b>22</b> |
| <b>Résumé .....</b>   | <b>25</b> |
| <b>Abstract.....</b>  | <b>26</b> |
| <b>Introduction.....</b>  | <b>27</b> |
| <b>I. Eléments du magnétisme .....</b>  | <b>32</b> |
| <b>I.1 Energie magnétique .....</b>   | <b>32</b> |
| I.1.1 Energie Zeeman.....   | 33        |
| I.1.2 Energie d'échange .....   | 33        |
| I.1.3 Energie d'anisotropie.....  | 35        |
| <b>I.2 Autres couplages d'échange.....</b>  | <b>38</b> |
| I.2.1 Couplage d'échange indirect (RKKY) .....                                      | 38        |
| I.2.2 Couplage d'échange antisymétrique (DMI) .....                                 | 39        |
| <b>I.3 Renversement de l'aimantation et propagation de parois .....</b>             | <b>41</b> |
| I.3.1 Cycles d'hystérèse .....  | 41        |
| I.3.2 Parois de domaine.....  | 42        |
| I.3.3 Précession et rotation.....   | 43        |
| I.3.4 Nucléation de domaines et propagation de paroi .....                          | 43        |
| I.3.5 Caractérisation de la propagation de parois de domaine .....                  | 46        |
| <b>II. Croissance, traitements et caractérisations de couches minces .....</b>      | <b>47</b> |

|   |           |
|---|-----------|
| <b>II.1 Croissance par pulvérisation cathodique.....</b>                                      | <b>48</b> |
| <b>II.2 Modes de croissance de couches minces.....</b>  | <b>51</b> |
| <b>II.3 Traitement thermique.....</b>   | <b>52</b> |
| <b>II.4 Traitement par irradiation.....</b>   | <b>52</b> |
| II.4.1 Interaction entre l'ion et une surface.....  | 53        |
| II.4.2 Interaction le long du parcours de l'ion dans une couche mince .....                   | 55        |
| II.4.3 Modifications structurales du matériau par irradiation .....                           | 56        |
| <b>II.5 Caractérisations structurales .....</b>   | <b>57</b> |
| II.5.1 Diffraction des rayons X .....   | 57        |
| II.5.2 Réflectivité des rayons X .....  | 58        |
| II.5.3 Microscopie à force atomique.....  | 59        |
| II.5.4 Microscopie électronique .....   | 60        |
| <b>II.6 Caractérisations magnétiques. ....</b>  | <b>62</b> |
| II.6.1 Magnétométrie par effet magnéto-optique Kerr (MOKE) .....                              | 62        |
| II.6.2 Microscopie Kerr .....   | 64        |
| II.6.3 Magnétométrie Kerr résolue en temps (Tr-MOKE).....                                     | 65        |
| II.6.4 Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) .....  | 65        |
| <b>III. Développements expérimentaux .....</b>  | <b>66</b> |
| <b>III.1 Développements expérimentaux de la pulvérisation cathodique .....</b>                | <b>66</b> |
| III.1.1 Système de dépôt à l'Institut d'Electronique Fondamentale (Orsay) .....               | 67        |
| III.1.2 Système d'élaboration de matériaux développé à Hefei (Chine) .....                    | 68        |
| <b>III.2 Développements expérimentaux du système d'irradiation par ions He<sup>+</sup> ..</b> | <b>70</b> |
| III.2.1 Mise en œuvre du faisceau d'ions à l'IEF (Orsay) .....                                | 70        |
| III.2.2 Mise en œuvre du système d'irradiation à NSTC (Hefei, Chine).....                     | 72        |
| III.2.3 Simulation du faisceau d'ions.....  | 74        |
| <b>III.3 Développement expérimental du système LP-MOKE.....</b>                               | <b>76</b> |
| <b>III.4 Développement expérimental du microscope optique Kerr .....</b>                      | <b>77</b> |
| <b>IV. Croissance, structure et magnétisme du système Pt/Co .....</b>                         | <b>78</b> |
| <b>IV.1 Croissance de Pt/Co .....</b>   | <b>79</b> |
| <b>IV.2 Système Pt/Co sur substrats rigides .....</b>   | <b>80</b> |
| IV.2.1 Impacts de substrats.....  | 80        |
| IV.2.2 Rôle de couche tampon.....   | 82        |
| IV.2.3 Conditions de croissance .....   | 85        |
| <b>IV.3 Analyse de domaines magnétiques dans Pt/Co sur substrats rigides.....</b>             | <b>87</b> |
| IV.3.1 Nucléation de domaines magnétiques .....   | 87        |

|  |            |
|--|------------|
| IV.3.2 Propagation de domaines magnétiques.....  | 88         |
| IV.3.3 Mécanismes de piégeages.....  | 90         |
| <b>IV.4 Système Pt/Co sur substrats flexibles.....</b>   | <b>91</b>  |
| <b>IV.5 Irradiation ionique sur les couches Pt/Co.....</b>   | <b>94</b>  |
| IV.5.1 Procédé d’irradiation des couches Pt/Co.....  | 94         |
| IV.5.2 Effet de l’irradiation sur les couches Pt/Co.....   | 95         |
| <b>IV.6 Conclusion sur le système Pt/Co.....</b>   | <b>98</b>  |
| <b>V. Contrôle de l’anisotropie magnétique du système Pt/Co.....</b>   | <b>99</b>  |
| <b>V.1 Contrôle réversible de l’anisotropie de Pt/Co par transition de phases de VO<sub>2</sub>.....</b>                   | <b>99</b>  |
| V.1.1 Elaboration et caractéristiques de l’hétérostructure TiO <sub>2</sub> /VO <sub>2</sub> /[Pt/Co] <sub>2</sub> ..      | 99         |
| V.1.2 Modulation réversible de l’anisotropie magnétique dans TiO <sub>2</sub> /VO <sub>2</sub> /[Pt/Co] <sub>2</sub> ..... | 101        |
| V.1.3 Insertion d’une couche tampon et procédé précontraint.....   | 103        |
| V.1.4 Conclusion sur l’effet de la transition de phase de VO <sub>2</sub> .....  | 104        |
| <b>V.2 Influence de couches diélectriques sur l’anisotropie de Pt/Co.....</b>  | <b>105</b> |
| V.2.1 Croissance et caractérisation des structures piézoélectriques-ferromagnétiques avec PMA.....                         | 106        |
| V.2.2 Influence de la couche d’oxyde diélectrique sur la PMA de Pt/Co/Pt... ..   | 108        |
| V.2.3 Conclusion sur l’influence de couches d’oxyde diélectrique.....  | 110        |
| <b>V.3 Modification de l’anisotropie par répétition de Pt/Co.....</b>  | <b>111</b> |
| V.3.1 Anisotropie et domaines magnétiques des hétérostructures Ta / Pt / Co / [Pt/Co] <sub>n</sub> / Pt.....               | 111        |
| V.3.2 Conclusion sur la modification de l’anisotropie par répétition de Pt/Co.....   | 115        |
| <b>V.4 Retournement de l’aimantation induit par accumulation de charges.....</b>   | <b>115</b> |
| <b>V.5 Conclusion sur le contrôle de l’anisotropie magnétique.....</b>   | <b>117</b> |
| <b>VI. Couplage d’échange dans Pt/Co/métal et Pt/Co/oxyde.....</b>   | <b>119</b> |
| <b>VI.1 Couverture avec des métaux lourds et légers.....</b>   | <b>119</b> |
| VI.1.1 Impact sur l’anisotropie magnétique.....  | 119        |
| VI.1.2 Impact sur la dynamique de l’aimantation.....   | 121        |
| VI.1.3 Effet d’un champ transverse sur les parois de domaines.....   | 124        |
| <b>VI.2 Couverture avec une couche d’oxyde.....</b>  | <b>127</b> |
| VI.2.1 Cas de Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> et MgO.....   | 128        |
| VI.2.2 Cas de RuO <sub>2</sub> et Ru.....  | 129        |
| <b>VI.3 Conclusion sur le couplage d’échange d’interface.....</b>  | <b>131</b> |



|  |            |
|--|------------|
| <b>Conclusions et perspectives</b> .....     | <b>132</b> |
| <b>Bibliographie</b> .....                   | <b>136</b> |
| <b>Résumé détaillé</b> .....                 | <b>147</b> |
| <b>Mes contributions scientifiques</b> ..... | <b>155</b> |
| <b>Publications</b> .....                    | <b>155</b> |
| <b>Brevets</b> .....                         | <b>157</b> |
| <b>Communications orales</b> .....           | <b>158</b> |
| <b>Communications par affiche</b> .....      | <b>158</b> |
| <b>Remerciements</b> .....                   | <b>160</b> |

## Argumentations et motivations de la demande

Titulaire de mon baccalauréat (série E mathématique et technique), en 1989, j'ai simultanément intégré l'université et le monde professionnel. J'ai évolué d'une position professionnelle d'ouvrier spécialisé à une activité de chargé de recherche à l'université de Beihang. L'acquisition de nouveaux diplômes, jusqu'à la récente réussite au diplôme de master démontre que je suis dans une constante démarche d'apprentissage, d'amélioration, et de progression. Ces 30 années d'évolution professionnelle m'amènent logiquement vers l'acquisition d'un diplôme validant cette progression. Je souhaite donc faire reconnaître cette progression par un diplôme de doctorat. Je pense également que les attentes du diplôme correspondent étroitement à mes expériences.

J'ai décidé d'obtenir un doctorat, car :

- Ce diplôme constitue une reconnaissance par mes pairs et par les institutions universitaires de mes activités passées. L'obtention du diplôme est le gage que mes compétences sont reconnues par la profession.

C'est pour mes supérieurs, une caution, un indicateur de crédibilité.

- J'aspire à une mise en cohérence de mon niveau de diplôme avec mon niveau de responsabilité car dans la réalité, j'occupe une fonction qui mobilise les mêmes compétences que des collègues recrutés avec un doctorat.

- L'obtention de ce diplôme permettra de me faire davantage reconnaître dans un environnement aux exigences de plus en plus fortes. Cela me permettra d'avoir plus de poids pour défendre, légitimer mes choix. Mes préconisations seront davantage prises en compte.

- C'est un facteur sécurisant pour moi, un renforcement de ma légitimité sur mon poste de travail vis-à-vis de mes collègues et étudiants que j'encadre au quotidien.

- L'obtention du diplôme me permettra de consolider mon parcours professionnel (sécuriser ma carrière, et garantir mon avenir) ; il est également un gage pour moi pour mon maintien de mes capacités à occuper cet emploi, au regard notamment de l'évolution des connaissances et des technologies.

- C'est également un atout pour accroître mes possibilités d'évoluer dans la carrière de chercheur en milieu universitaire ou privé, en France ou à l'international. Je cherche à évoluer dans mon métier. Mon objectif est de devenir chercheur associé, pour y parvenir je dois officialiser mes compétences par ce diplôme.

- Le diplôme de doctorat est aussi un élément primordial pour augmenter mes chances de succès à des demandes de financements (projet locaux, provinciaux, nationaux et talents importés) et de concourir à des appels à projets plus conséquents.

- Enfin, cela donnera aussi plus de poids à la société dont je suis un des cofondateurs. J'ai commencé ma carrière dans la recherche en tant que technicien de recherche dans un laboratoire

du CNRS. Grâce à mes activités quotidiennes au sein des différents laboratoires et aux formations professionnelles continues, je suis monté en compétences pour devenir chercheur. Je veux donc faire reconnaître cette progression comme ce qu'elle est : une formation à la recherche par la recherche. Je pourrai aussi donner une valeur supplémentaire aux productions scientifiques auxquelles j'ai participé.

De plus, je souhaite aussi raccourcir ce projet de formation et le faire coïncider avec mon séjour en Chine.

Ces raisons m'ont amené donc naturellement vers le processus de VAE

Mon choix c'est donc porte pour effectuer cette VAE à l'Université de la Sorbonne car cette université a une très bonne réputation en France et à l'international. Cela est un atout pour la reconnaissance du diplôme et de mon niveau. Le fait aussi, que je n'y ai aucun lien professionnel ou de collaboration favorise l'impartialité. Les thématiques des laboratoires de l'ED 397 (source site WEB ED) sont associées aux principales problématiques actuelles en science des matériaux : matériaux pour la réactivité et la catalyse, matériaux hybrides organiques-inorganiques et multifonctionnels (optique, magnétisme, biomatériaux), matériaux polymères, nanostructures (nano magnétisme, spintronique) et physique mésoscopique. Ces thématiques sont en cohérence avec mes thèmes de recherches. De plus, différentes équipes liées à l'ED (par exemple : Nanomatériaux et matériaux nanostructurés, Réactivité, Caractérisation et Spectroscopies (NARCOS), Design et étude de nouveaux matériaux à propriétés remarquables (DEMARE)) ont des sujets de recherches similaires à mes activités de recherches.

















# Retour réflexif sur mon parcours professionnel

## I. introduction.

J'ai commencé ma vie professionnelle il y a déjà plus de 30 ans, en juin 1989 juste après ma réussite au baccalauréat. Ce cheminement tout au long de ces années m'a apporté beaucoup tant sur le plan personnel que sur le plan professionnel. J'ai travaillé dans des environnements très différents tant par les secteurs de l'enseignement, l'industrie, la recherche publique, les contextes public/ privé, en France ou à l'étranger que les thématiques. Mais quel que soit l'environnement j'ai toujours pu m'adapter et évoluer grâce à ma curiosité et à ma capacité à me former personnellement ou en suivant des formations techniques, théorique et ou diplômantes permettant d'articuler les connaissances et compétences techniques et avec celles plus scientifiques. Ce parcours liant expériences professionnelles et formations m'a permis de me former à la recherche par la recherche pour la recherche

Ce chemin, débutant en tant qu'agent de sécurité, est passé par un poste dans l'académie de Nancy Metz en qualité de maitre d'internat puis c'est poursuivi par d'autres divers emplois, successivement militaire, maitre-nageur, employé d'intérim. J'ai ensuite intégré, en 1997, la fonction publique en qualité de technicien de recherche au CNRS. Depuis mon entrée dans cette institution publique développant la recherche en France, j'ai eu à cœur de continuer de progresser. Tout ce parcours m'a permis d'arriver aujourd'hui à un poste de chargé de recherche à l'université de Beihang en Chine.

De ma vision de mon parcours et à travers les différentes étapes de ma vie professionnelle, je vais essayer de mettre en lumière les apports de mes expériences, formations, sur les compétences et qualités acquises qui m'ont permis, aujourd'hui de devenir chercheur.

## II. Un début de carrière atypique.

Mon début de carrière professionnelle a rimé avec entrée à l'université. Afin de financer mes études et de supporter le cout de la vie, j'ai en même temps mené de front ces deux activités. Si lors de mon passage à l'université j'ai appris les bases de la science qui m'ont été ensuite fort utile, mes activités professionnelles m'ont amenée à découvrir le monde du travail. Les divers postes occupés (maitre d'internat, agent de surveillance) m'ont permis de sortir de mon environnement du monde scolaire et universitaire et d'avoir un aperçu de la différence privé -publique. Dans le privé les activités s'associent plus à : rendement, profit, où l'on doit minimiser les coûts et optimiser l'efficacité et le profit.

Mon premier emploi a été celui d'agent de surveillance. Mon activité principale était d'effectuer des rondes dans les installations de d'entreprise pour m'assurer qu'il n'y avait pas de problèmes au niveau de la sécurité (feu, inondation, issues de secours bloquées, intrusion de personnes indésirable). Cette expérience d'une année m'a amené à comprendre les enjeux de sécurité et d'hygiène au sein entreprises.

En septembre 1990 j'ai enchainé sur un poste de maitre internat. Mes missions principales étaient de gérer les fichiers "élèves", gérer des sorties culturelles (cinéma, théâtre), surveiller les élèves lors de la demi-pension, surveiller les études du soir et assurer une présence sécuritaire la nuit. Pendant ces trois années passées dans deux lycées différents j'ai effectué du soutien scolaire et j'ai dû m'adapter au niveau des élèves et de leurs programmes d'enseignement. Ce poste a été ma première approche avec l'enseignement. Il a également développé ma capacité d'organisation.

En septembre 1993, lors mon service national en tant que Volontaire Service Long Outre-Mer'. J'ai intégré la gendarmerie de l'air en qualité d'officier de sécurité à Djibouti.

J'avais en charge la gestion et l'encadrement et la formation de 12 gendarmes effectuant leur service national. Ce poste m'a permis d'apprendre la rigueur, de développer mes facultés d'adaptation dans un milieu particulier et de m'ouvrir à une culture différente. Il a également développé mon sens du travail en équipe dans des conditions climatiques difficiles, m'a de plus permis d'améliorer mon sens de l'organisation, de la sécurité et de comprendre l'utilité des formations permanentes.

A mon retour en France, j'ai commencé par travailler en intérim. J'ai exercé le métier de maitre-nageur puis diverses missions d'ouvrier spécialisé (peinture et métallisation de pièces métallique, MPLS ; laborantin de chantier, GTM ; Monteur ; conducteur régleur offset, Yeramex.). Ces missions variées, m'ont permis d'améliorer et de démontrer mes facultés d'adaptations.

Si ce début de carrière n'a en apparence que peu de relation avec le métier de chercheur, il m'a surtout permis d'acquérir et de développer des compétences générales nécessaires à tous corps de métiers. Quelle que soient ces compétences- encadrement, hygiène et sécurité, rigueur et honnêteté, adaptation, connaissance du besoin de formation pour élever le niveau de performance. Elles m'ont toutes été d'une grande utilité pour la suite de ma carrière. Elles m'ont permis de réussir le concours de technicien de recherche du CNRS malgré mon seul baccalauréat et d'entrer dans le monde de la recherche en février 1997.

### **III. mon parcours en immersion dans le monde scientifique et technique**

Mon premier pas dans le domaine de la recherche publique c'est fait au bureau d'études de l'institut de physique et chimie des matériaux de Strasbourg (IPCMS). Technicien j'ai eu pendant 5 ans comme activité majeure l'appui à la conduite des expériences en concevant et réalisant de bâtis expérimentaux.

Si pendant mes années de lycée, j'avais appris le dessin technique, la conception d'ensemble mécanique et d'autres matières technologiques, ce poste fut leur mise œuvre. Pour être efficace et compétant, je me suis formé dans un premier temps avec des collègues chercheurs, enseignants chercheur, ingénieurs sur les aspects particuliers de la conception pour le domaine des matériaux en couches mince. Dans un deuxième temps j'ai suivi des formations techniques plus formelles (technique du vide, mécanique de précision, prototypage, cryogénie, méthodologie et conception de projet). Ma curiosité scientifique m'a rapidement fait prendre conscience de mes lacunes théoriques. J'ai donc suivi en cours du soir pendant trois ans un diplôme d'étude universitaire en science et technologie (DEUST) process industriel mention électromécanique. Pendant ces années à l'IPMS j'ai découvert le monde de la recherche et de l'université et des nouveaux domaines : le domaine des matériaux, des micro et nanotechnologies. Elles ont été aussi le terrain propice pour la création de liens avec d'autres chercheurs, personnels technique et étudiants. Nombre de ces étudiants sont devenus professeur ou chercheur ou sont partis dans le domaine privé. Ils sont pour

moi un réseau sur lequel je peux m'appuyer. Mais surtout j'ai découvert la caractérisation de couches minces (AFM, XRD, XRR) et aux dépôts de couches minces par pulvérisation cathodique, ainsi que par évaporation par jet moléculaire (EJM, MBE en anglais). De cette découverte est né mon intérêt pour le dépôt et la caractérisation de couches minces ce qui est la base de mon domaine de recherche actuel. J'ai donc décidé en 2002 de chercher une affectation me permettant de découvrir plus ce domaine et j'ai intégré le Groupe de Recherche en Imagerie, Instrumentation et Informatique de l'université Caen (GREYC).

Cette nouvelle affectation a été un moment charnière pour ma progression dans le domaine des matériaux. Ce poste avait deux composantes : une instrumentation, une composante matériaux (élaboration des couches minces, réalisations de micro dispositif) ; j'ai fait mes premières armes sur le dépôt de couches minces, et les techniques de fabrication en micro et nanotechnologie. Elle a été aussi un moment clé pour ma formation à la recherche par la recherche car l'équipe étant restreinte elle m'a conduit à développer de nouvelles connaissances, également de devenir plus polyvalent. L'élaboration de matériaux et de dispositifs m'a enseigné la rigueur et le respect des protocoles et pour la première fois j'ai dû mettre par écrit les procédés d'élaborations dans des « cahiers de manips » et de développer de nouvelles connaissances : dépôts de couches mince par pulvérisation cathodique, dépôt par laser pulsé., gravure sèche, gravure humide, Lithographie optique, caractérisation par profilomètre, par microscope a force atomique. Ces nouvelles connaissances et compétences je les ai optimisées par des formations CNRS (dépôt et gravure de couches minces, caractérisations des matériaux en couches minces, physique des plasma), puis par des formations diplômantes au CNAM (DEST instrumentation). Ces cours m'ont permis de combler certaines lacunes théoriques en mathématiques (mathématiques pour ingénieur), en capteur, en instrumentation, en informatique, ainsi que sur les matériaux (couches métalliques, couches minces). Du fait de la taille restreinte de l'équipe et nos moyens techniques, financiers limites, il m'est apparu nécessaire d'interagir avec d'autres laboratoires locaux. Mes compétences instrumentales ainsi que de la capacité de note équipe à déposer et réaliser des micro capteurs dans notre salle blanche, m'ont amené participer à des collaborations bilatérales avec plusieurs autres équipes de recherche. De cette interaction avec d'autres laboratoire pour les caractérisations des couches minces (caractérisations par rayon X avec le CRISMAT, AFM avec le LERMAT) et deux laboratoire (CIRIL, GANIL) sur différents sujets (dépôts de couches minces, gravure et lithographie) est arrivé mes premières publications en co-auteur. Elles sont pour moi le premier pas vers le devenir d'un futur chercheur et un début de reconnaissance de mon travail et de mes capacités. Un des avantages de travailler dans une petite équipe de recherche est la communication. Il est beaucoup plus facile de communiquer et d'interagir. Cela m'a permis, lors de nos réunions hebdomadaires de découvrir d'autres aspects de la vie de chercheur : la recherche de financement, les difficultés administratives, le rôle de la recherche et l'impact de la recherche sur l'économie d'un pays. Lors de mon séjour à l'Ipems je n'avais pas une vision aussi élaborée des problèmes sociétaux, de l'utilité et la complexité du monde de la recherche. Je me contentais de résoudre un problème technique a un moment donne pour une question donnée. Du fait également de la taille de l'équipe, il est plus facile de participer la vie du laboratoire. J'ai donc pendant deux ans été correspondant informatique et formation de l'unité de recherche. J'ai participé aux réunions et rédactions des plans annuel de formation. Cela m'a aussi permis de mieux visualiser l'aspect besoin et gestion de la formation au sein d'un institut. A cette période le CNRS a encouragé ses employés à s'investir plus généralement dans des réseaux d'expert. J'ai alors intégré deux réseaux qui me semblait important pour moi : le réseau des mécaniciens et le réseau du vide. Ces deux réseaux me permettent encore actuellement d'échanger avec des confrères et de mutualiser nos compétences. Après trois ans passés en Normandie, j'ai décidé pour des raisons personnelles de quitter de la Normandie pour le ciel parisien. J'en ai profité pour trouver une affectation qui me permettait d'évoluer. J'ai alors intégré en octobre 2005 l'équipe NanoSpinTronique (NST) de l'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF) à Orsay. Je me suis rapidement intégré à l'équipe, et j'en suis devenu un membre à part entière, participant a toutes les discussions scientifiques, techniques,

budgetaires, j'ai même été pendant deux ans élu représentant des ITA au conseil de département, ce qui m'a donné la chance de participer plus activement à la vie générale du laboratoire. Le travail quotidien sur différents bâtis expérimentaux et en salle blanche m'a familiarisé avec ce domaine de recherche et de nouvelles technologies. J'ai de plus à cette époque associé de plus en plus aux communications scientifiques et aux projets. De ce fait, j'ai découvert l'importance et la difficulté de communiquer sur les travaux de recherche (co-auteur d'une vingtaine d'articles scientifiques, participation à plusieurs conférences, réalisation et présentations de posters).

Cette équipe était très reconnue dans le domaine de l'électronique de spin à travers le monde. De ce fait j'ai donc eu l'opportunité de rencontrer des étudiants, collaborateurs étrangers, de collaborer avec de nombreuses équipes nationale et internationale. Ces années passées dans cet environnement ont joué un rôle majeur dans le développement de mes compétences techniques et scientifiques. La taille humaine de cette entité dans un gros laboratoire a favorisé mes échanges scientifiques et technique avec les chercheurs et doctorants. Leurs disponibilités et leurs envies de m'aider à évoluer m'ont permis d'apprendre le métier de chercheur, de comprendre le monde de la recherche et de l'industrie aux niveaux national et international. Cette compréhension du circuit de la recherche m'a aussi été apportée par la participation à plusieurs projets de recherche (ANR, projets européens : Tableau 1 page 43.). Grâce à mon évolution, à l'évolution de mes activités et au développement de mes compétences, j'ai successivement réussi des concours de promotion internes au CNRS (Technicien de classe exceptionnelle 01/2006, Assistant ingénieur 07/2006, Ingénieur d'études 07/2013). La préparation à ces concours m'a enseigné et permis de maîtriser deux formes de communication : la rédaction de dossiers de carrière et la présentation orale. Cela m'a également amené à m'investir plus intensivement dans la formation des étudiants et visiteurs venant dans notre équipe. En 2013, il m'a été confié le projet « irradiation ». Ce projet avait pour but de développer un équipement expérimental capable d'irradier par ions hélium les couches minces afin de changer leurs propriétés structurelles et magnétiques. Après avoir consulté la bibliographie sur le sujet et recherché des collaborateurs compétents dans le domaine (SNCSM), j'ai monté et développé un système répondant au cahier des charges, réalisé des irradiations de couches. J'ai en parallèle effectué des simulations (SRIM) pour démontrer et vérifier que le principe physique appliqué par mon équipement était bien de l'irradiation par ions et non pas de l'implantation ionique. L'aboutissement de ce sujet a été la création d'une start-up (Siltene, devenue ensuite Spin ion). Ce projet m'a permis en outre de développer mon autonomie et de participer activement à un nouveau projet de recherche dans l'équipe.

Je pense que c'est à partir de mon succès au concours d'ingénieur que mes activités ont commencé à basculer réellement du travail de technicien vers celui de chercheur. Cette progression s'est faite discrètement puis s'est vraiment affirmée en 2015 lorsque j'ai accepté de partir en détachement à l'université de BEIHANG en Chine.

Le bilan de mon évolution, de l'acquisition et la maîtrise de compétences avant mon départ pour PEKIN était déjà assez fournis.

J'ai commencé par développer des nouveaux instruments pour la recherche et donc maîtrisé le domaine de la conception instrumentale relatif aux dépôts et élaboration de couches minces (sputtering, goniomètres de polissage, bâti de gravure ionique, bâti de dépôt par laser pulsé...). Puis j'ai défini des protocoles expérimentaux, appris les règles de travail en milieu particulier (salle blanche). J'ai également réalisé et caractérisé des échantillons et des micro dispositifs (dépôt par EJM, Sputtering, Laser, effet Kerr, AFM, Xray ...) et maîtrisé des techniques de dépôts et de caractérisation. J'ai mené à terme mon premier projet de recherche (irradiation), ce qui a permis de créer une start-up (Siltene, devenu par la suite SpinIons). Je me suis investi dans la vie du laboratoire et j'ai participé à des réseaux d'expert nationaux.

## IV. D'ingénieur à chercheur

En décembre 2015, je suis arrivé à Pékin. Le laboratoire IRC (interdisciplinary research center, Fert institut) venait juste d'être créé. C'était ma première affectation en qualité de chercheur (ingénieur de recherche). Je devais monter une petite équipe matériaux pour le dépôt et la caractérisation de couches minces. Puis pour ceux d'occasion, de gérer leur jouvence et leur amélioration. N'étant pas titulaire d'un diplôme de master, ni de doctorat, j'ai choisi la possibilité de valider en Chine un niveau équivalent, en passant une certification d'expert étranger (foreign expert certification) pour pouvoir occuper ce poste. Ma première tâche a été de gérer l'achat d'équipements, neufs ou d'occasion. Cette première étape a été pour moi très enrichissante. Le fait de m'avoir donné le libre choix de la sélection des équipements est un gage de confiance et de reconnaissance de mes compétences dans le domaine. Les plus gros obstacles pour moi ont été de communiquer, en raison de la barrière de la langue, et la différence d'administration et de gestion. La seconde étape a été de tester et d'élaborer des couches minces de très bonnes qualités, de m'initier à la gravure par AFM, puis de former les futurs utilisateurs et ingénieurs en charge de la gestion au quotidien des équipements. Durant cette seconde phase, j'ai pris conscience de mes lacunes dans le domaine des matériaux. J'ai décidé de résoudre ce manque de connaissances en me documentant plus sérieusement puis à mon retour en France de suivre une formation (diplôme de master science des matériaux en formation continue). Pour développer ce nouveau savoir, j'ai décidé de mener une recherche plus approfondie sur les effets des différents paramètres d'élaborations des multicouches (conditions de dépôts etc..) sur les propriétés magnétiques de films à base de Co/Pt afin de mieux comprendre les impacts du matériau sur les dispositifs. Ce travail de recherche s'est avéré très utile pour notre équipe pour optimiser les qualités de nos dispositifs, mais de plus m'a été très enrichissant et formateur. Il m'a permis de développer mon propre thème de recherche et de co-encadrer un étudiant en thèse. N'ayant jamais été premier auteur d'une publication, la difficulté majeure a été pour moi d'aider cet étudiant à écrire sa première publication en premier auteur.

Après 15 mois passés en Chine je suis retourné en France. Le laboratoire IEF avait fusionné avec celui du LPN pour devenir le C2N. J'ai dû redémarrer les équipements non utilisés pendant 15 mois et redévelopper de nouvelles multicouches pour les projets de plusieurs doctorants, puis prévoir l'arrêt et le déménagement de mes équipements vers les futurs nouveaux locaux du C2N. Impactée par le retard de la construction et de la livraison du nouveau bâtiment, cette période a été longue (3ans) et éprouvante. Mais cela m'a aussi permis de dégager du temps de travail pour suivre une formation continue en matériaux, rédiger mon mémoire de master, acquérir ce master en sciences des matériaux et également un certificat d'enseignement du français langue étrangère. De plus pendant ces trois années, j'ai continué (4 séjours d'un mois par ans) de collaborer avec l'Université de Beihang, d'intervenir dans deux écoles d'été (un cours sur l'initiation aux techniques du vide et un sur le dépôt de couches minces) et de participer au développement de deux nouvelles annexes (Qingdao, Hefei). Du fait de mon investissement sur les projets de Qingdao et de Hefei (conception d'un bâti matériaux, choix des équipements pour la future équipe matériaux, poursuite des projets de recherches), il m'a été proposé de revenir en Chine, cette fois à Beihang Hefei, pour monter l'équipe matériaux sur ce nouveau site.

Par choix personnel et professionnel, je me suis mis en disponibilité du CNRS pour revenir en Chine. J'y suis depuis janvier 2020 et j'exerce mon activité de chercheur à Hefei. Arrivé en janvier 2020, il m'a fallu dans un premier temps installer et démarrer les systèmes expérimentaux à l'aide d'étudiants en master et thèse. Ce fut une tâche ardue et compliquée en partie par les problèmes dus à la situation sanitaire. Puis ce cap important et nécessaire effectué, je me suis attelé à la poursuite de mon thème de recherche (l'influence des matériaux sur certains paramètres de l'anisotropie perpendiculaire), j'ai participé au recrutement d'ingénieurs pour me seconder dans l'élaboration et la caractérisation des matériaux en couches minces. La soumission de mon premier article en premier et correspondant auteur dans une revue internationale a été pour moi un nouveau

progrès dans ma vie de chercheur. Il a ensuite été suivi par des présentations orales dans des conférences nationales ou laboratoires confirmant cette évolution. Sous la tutelle d'un professeur de l'université, j'accompagne plusieurs doctorants dans leurs projets de recherche. Une part de mon temps est consacrée à l'encadrement de ces étudiants, au dépôt de projets (projet imported talent, foreign expert) pour trouver des financements, à la rédaction de brevets, à la publication des résultats et à la participation aux conférences. Une seconde partie, est quand elle est réservée à l'expérimentation et au développement de nouveaux projets et équipements. La troisième partie est afférente à la création d'une start-up donc je suis le cofondateur et le directeur technique (CTO). Cette société a été créée pour développer et commercialiser des équipements de dépôts par pulvérisation cathodique en Chine. L'acquisition de ces systèmes à l'étranger étant devenue très compliquée, nous avons décidé avec des collègues de palier à ce problème en créant notre propre compagnie. Ce rôle de CTO pour moi est très enrichissant et nouveau. Mon quotidien dans ce projet est de former, recruter le personnel technique, faire la veille scientifique et technique, résoudre les problèmes techniques, représenter la société dans des colloques, salons, conférences, et continuer à mener les projets de recherche et de développement. Ce transfert de la science vers l'industrie est très gratifiant pour moi. Ce nouveau rôle développe en plus de mon savoir technique et scientifique des compétences de management, de communication et de gestion. Pour clore le chapitre de mes activités actuelles, il m'a été proposé d'être éditeur associé d'un jeune journal scientifique et culturel, Journal of Latin American Sciences and Culture (JLASC) en open access. Cette nouvelle fonction est pour moi un nouveau défi. Elle me permet aussi de mieux comprendre le monde de l'édition, en particulier celui de la science et de la culture ainsi que le schéma du parcours d'une publication, de la soumission au rejet ou à l'acceptation.

## **V. Bilan et conclusion**

Ce retour réflexif et la restitution par écrit de mon parcours a constitué un temps de prise de conscience de soi, nécessitant un approfondissement de l'examen de mon parcours. Par exemple, les données recueillies m'ont poussé à chercher à mieux mettre en évidence mon évolution professionnelle, personnelle ainsi que de faire un bilan sur mes compétences et qualités acquises tout au long de ce parcours et de comprendre pourquoi et comment j'en suis arrivé à devenir chercheur à Beihang.

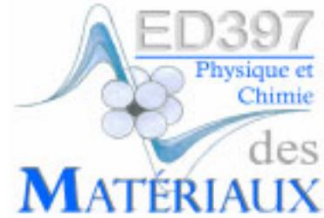
L'avantage d'un parcours professionnel long est que l'on peut y apprendre et développer maintes choses. Le mien s'étend sur plus de trente ans, et je peux le résumer en trois parties : un début atypique, une seconde partie axée sur la technique, l'expérimentation et un troisième correspondant plus au métier de chercheur.

Au commencement, j'ai développé des compétences générales, utiles à beaucoup de corps de métier : persévérance, honnêteté, rigueur, adaptation, encadrement, travail en équipe, hygiène et sécurité. Dans la partie médiane, j'ai acquis, développé, voire maîtrisé des compétences techniques tels que la conception et la réalisation d'équipements, le dépôt de couches minces, l'élaboration de micro et nanodispositifs, et la caractérisation de matériaux et de dispositifs. J'y ai également abordé des aspects plus généraux comme la communication, le fonctionnement de la recherche en France et parfois à l'international, la compréhension des enjeux sociétaux de la recherche, de son impact sur l'économie. J'ai développé mon réseau et participé à des réseaux d'expertises nationaux.

Sur la suite de ma carrière, j'ai amélioré ma communication, mes capacités d'encadrement, de gestion, de management, développé davantage mon réseau et mes connaissances scientifiques. Je participe plus activement à la recherche, sa diffusion et son transfert vers l'industrie.



# Retour d'expérience Scientifique



# Sorbonne Université

Ecole doctorale 397

Physique et Chimie des Matériaux

## **Etude du système Pt/Co**

*De la croissance au magnétisme et à l'électronique de spin*

Par Sylvain Roger EIMER

Thèse de doctorat de Physique

Présentée et soutenue publiquement le 06/09/2023

Devant un jury composé de :

- Dr Jon GORCHON, Rapporteur
- Pr Silviu COLIS, Rapporteur
- Dr Michel VIRET, Examineur
- Pr Michel HEHN, Examineur
- Pr. Nadine WITKOWSKI, Directrice de l' école doctorale ED397
- Dr Yunlin Jacques ZHENG, accompagnateur scientifique
- Mme France UEBERSFELD, accompagnatrice pédagogique
- Mme Roselyne FRIEDENBERG, Responsable de la Formation Continue

*A mes parents, ma famille et mes amis.*

**Fabricando fit faber**

C'est en forgeant qu'on devient forgeron.

(Comenius, 1592-1670)

## Résumé

### **Etude du système Pt/Co**

De la croissance au magnétisme et à l'électronique de spin

Par Sylvain Roger EIMER

La thèse porte sur l'élaboration et l'étude de couches nanométriques allant de Pt/Co/Pt à Pt/Co/oxyde et Pt/Co/métal lourd. Ces couches pourront faire partie du cœur magnétique de dispositifs spintroniques. Une anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) est requise. L'objectif est de modifier et contrôler la PMA et de manipuler l'aimantation, par un champ magnétique et aussi par tout autre moyen tel que la lumière, la contrainte ou le courant. Une part importante du travail concerne la mise en place de plusieurs plateformes de croissance (pulvérisation cathodique), de traitement (irradiation ionique) et de caractérisation (magnéto-optique Kerr), travail auquel j'ai contribué ou que j'ai dirigé. La PMA de couches de Co a été obtenue sur substrats rigides et souples, propices pour des applications. La modification de la PMA a été étudiée en variant les couches tampon et de couverture. Une modulation réversible de la PMA a été réalisée par le biais de la transition de phases d'une couche tampon de VO<sub>2</sub>. Dans des couches Pt/Co/oxyde et Pt/Co/métal lourd, la propagation de parois de domaines magnétiques a été analysée par microscopie Kerr sous impulsions magnétiques perpendiculaire et transverse, afin de sonder des effets d'interface. La propagation non-isotrope de parois de domaine en présence d'un champ magnétique transverse révèle une texture d'aimantations chirale compatible avec l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya. Cela suggère que des couches ultraminces (< 1 nm) de Co sont susceptibles de générer des états chiraux tels que skyrmions à la température ambiante. Ce travail montre que des structures basées sur Pt/Co sont versatiles et utiles pour l'électronique de spin.

Mots clés : couches ultraminces magnétiques, système Pt/Co, anisotropie magnétique perpendiculaire, interaction Dzyaloshinskii-Moriya, électronique de spin

## Abstract

### **Study of Pt/Co system**

From growth to magnetism and spin electronics

By Sylvain Roger EIMER

The thesis focuses on the growth and study of nanoscale layers from Pt/Co/Pt to Pt/Co/oxide and Pt/Co/heavy metal. These layers could be part of the magnetic core of spintronic devices. Perpendicular magnetic anisotropy (PMA) is required. The objective is to modify and control the PMA and to manipulate the magnetization, by a magnetic field and also by any other means such as light, stress or current. A significant part of the work concerns the establishment of several platforms for growth (sputtering), treatment (ion irradiation) and characterization (magneto-optic Kerr effect), work to which I contributed or led. The PMA of Co layers was obtained on rigid and flexible substrates, suitable for applications. The modification of the PMA has been studied by varying the buffer and cover layers. Reversible modulation of PMA was achieved through the phase transition of a VO<sub>2</sub> buffer layer. In Pt/Co/oxide and Pt/Co/heavy metal layers, the propagation of magnetic domain walls was analyzed by Kerr microscopy under perpendicular and transverse magnetic pulses, in order to probe interface effects. The non-isotropic propagation of domain walls in the presence of a transverse magnetic field reveals a chiral texture of magnetizations compatible with the Dzyaloshinskii-Moriya interaction. This suggests that ultrathin layers (<1 nm) of Co are likely to generate chiral states such as skyrmions at room temperature. This work shows that structures based on Pt/Co are versatile and useful for spin electronics.

Keywords: magnetic ultrathin films, Pt/Co system, perpendicular magnetic anisotropy, Dzyaloshinskii-Moriya interaction, spin electronics

## Introduction

Bien que le magnétisme soit connu depuis l'antiquité [Li1954] et l'élaboration de couches minces depuis l'Égypte antique (5000 ans avant notre ère), l'électronique de spins est née il y a seulement une trentaine d'années avec la découverte de la magnétorésistance géante (GMR) par A. Fert et P. Grünberg dans des multicouches de métal ferromagnétique (FM) et de métal non-magnétique (NM) [Baibich1988, Binasch1989]. La découverte a été couronnée par le prix de Nobel de Physique en 2007. La magnétorésistance (MR) était pourtant connue depuis Lord Kelvin (1856) [Thomson1856]. Cependant, l'effet du champ magnétique sur la résistance d'un métal FM tel que Fe est très faible ( $<$  quelques %) et n'est guère exploitable sur le plan technologique. Ainsi, l'électronique classique exploite seulement la charge électrique et ignore le spin de l'électron. L'effet GMR montre que la cohérence du spin de l'électron est conservée et peut être exploitée à travers des structures nanométriques, de dimensions largement inférieures au libre parcours moyen des électrons de conduction. Ainsi, on peut moduler la résistance de multicouches FM/NM, en contrôlant l'aimantation des couches FM par un champ magnétique extérieur. Moins de dix ans après sa découverte, la GMR a été utilisée dans la tête de lecture magnétique, augmentant considérablement la densité de mémoires dans un disque dur.

L'empilement de base FM/NM/FM est appelé une vanne de spins, car le courant traversant l'empilement est plus ou moins filtré en spins en fonction de l'aimantation des couches FM. La vanne de spins ouvre la voie à la possibilité de générer un courant polarisé en spins et de l'injecter dans un matériau NM. Il a été rapidement démontré qu'un couplage d'échange antiparallèle existe entre les deux couches FM, lorsqu'elles sont séparées de l'ordre de 1 nm [Parkin1990, Parkin1991]. Ainsi, l'effet GMR est optimal à cette distance de séparation pour mettre au point des vannes de spins à faible champ magnétique [Dieny1991]. En parallèle, l'effet similaire à la GMR a été recherché dans des jonctions tunnels FM/isolant/FM. La magnétorésistance tunnel (TMR) a été observée à l'ambiante dans des jonctions tunnel à base de MgO [Butler2005] ou de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [Miyazaki1995, Moodera1999].

Les mises au point de vannes de spins et des jonctions tunnel magnétiques ont constitué des étapes importantes dans le développement de l'électronique de spins. Au lieu d'un champ magnétique, il est devenu envisageable de modifier l'aimantation par un courant polarisé en spins *via* l'effet « spin torque transfer », ce qui offre des perspectives d'application considérables [Slonczewski1996]. Parkin *et al.* ont proposé une structure de mémoires « Racetrack memory »,

consistant en une chaîne de domaines magnétiques déplaçable et pilotable par un courant et ouvrant la voie à une architecture 3D de mémoires magnétiques [Thomas2007, Parkin2008].

La mise en évidence de l'effet d'un courant sur l'aimantation a donné une grande impulsion à tout un champ de recherche sur la manipulation et le renversement de l'aimantation par des effets physiques autres qu'un champ magnétique. Étant donné que la plupart des fonctions spintroniques sont entraînées par un courant de spin, un flux de moment angulaire de spin, de nombreuses recherches sur la spintronique ont été menées dans le monde entier pour établir des méthodes polyvalentes de génération, de détection et de manipulation du courant de spin. Par exemple le renversement de l'aimantation peut être effectué par des effets de types Rashba ou Spin Hall Effect (SHE) [Garello2013] ou par la lumière de façon ultrarapide [Hehn2021]. On peut aussi mentionner l'interaction de l'aimantation avec une onde acoustique (effet déformation) [Thevenard2013]. Dans cet élan de recherches, une nouvelle méthode pour générer un courant de spin à partir de la chaleur a été développée [Saitoh2006] ; ce phénomène est appelé « effet Seebeck de Spin (ESS) ». En utilisant l'ESS, une technologie de conversion d'énergie basée sur le spin, (conceptuellement différente de la production thermoélectrique conventionnelle) un nouveau domaine de recherche appelé « spin caloritronique » a été développée [Yu2017, Ushida2021]. Après la découverte de l'ESS, ces études expérimentales et théoriques sur les phénomènes de thermo-spin ont progressé rapidement.

Pour ces recherches, des empilements de couches associant différentes propriétés sont le plus souvent utilisés. Une alternative concerne des matériaux multiferroïques artificielles, en nanocomposites ou en structures 3D, associant des composantes ferromagnétiques et d'autres composantes ferroélectriques, piézoélectriques, magnétostrictives [Lei2013] ou photostrictives. L'objectif est de pouvoir manipuler l'aimantation de la composante magnétique du composite, en agissant sur une autre composante par un champ électrique, la déformation ou la lumière ou d'autres techniques. Une voie complémentaire est aussi d'intégrer cette nano-électronique sur des nanodispositifs (nanocapteurs, nanomoteurs, nano actionneurs) [Ghibaudo2014, Rohan2014] sur différents substrats rigides ou flexibles [Leydecker2016,] et utiliser les propriétés magnétiques comme éléments actifs du nanocapteur [Xu2011]. Par exemple, des dispositifs nanométriques de type SiP (systems-in-package) ou SoC (system-on-chip) [Roda2011], intégrant des détecteurs, la communication radio et d'autres fonctionnalités, pourraient détecter toutes sortes de substances chimiques, toxiques ou non, dans l'environnement, la nourriture ou notre corps (Projet NANOFUNCTION de l'Union européenne).

Le cobalt a un rôle tout particulier dans le magnétisme, aussi bien pour ses propriétés que pour les propriétés qu'il induit dans des composés et alliages comme CoFeB, CoPt, *etc.* Le cobalt présente la structure hexagonale compacte à l'ambiante, alors que le fer et le nickel se cristallisent en structures cubiques centrée et à faces centrées, respectivement. Ainsi, l'anisotropie magnéto-cristalline de Co est uniaxiale et intrinsèquement plus forte que celles de Fe et de Ni, d'un et deux ordres de grandeur respectivement.

Alors que l'aimantation dans un film tend à s'aligner dans le plan du film, il a été montré qu'une couche ultramince de Co peut présenter une anisotropie avec l'axe facile d'aimantation perpendiculaire à la couche. L'anisotropie magnétique de Co est très sensible à l'interface avec le substrat ou le support. Dans le système Pt/Co/Pt par exemple, l'anisotropie perpendiculaire de Co dépend de l'orientation de la première couche de platine. Vieu *et al.* ont montré que l'anisotropie du système Pt/Co/Pt est optimale, quand la première couche de Pt a l'orientation (111) et que cette orientation peut être obtenue à la température ambiante [Vieu2002]. L'orientation (111) de Pt dépend du « buffer » (couche tampon), du substrat et de la température de dépôt [Chappert1988, Barbier1993, Thiele1995, Sreemany2006, Kang2017]. En plus, l'anisotropie de la couche de Co peut être modifiée *a posteriori* par des traitements : recuit, recuit sous champ magnétique, par impulsions laser XUV [Jacyna2018], par impulsions laser femto-seconde [Spezzani2014] ou par bombardement ionique (irradiation, implantation) [Devolder2000, Rettner2002, Vieu2002, Fassbender2004].

Deux des atouts majeurs de Co sont son fort couplage spin-orbite avec un atome de métal noble ou de terres rares et sa propension à avoir une anisotropie perpendiculaire lorsqu'il a une interface avec un métal lourd ou une terre-rare. Ainsi, des multicouches Co/Pd et Co/Pt dont l'anisotropie perpendiculaire ont été découverte par Carcia en 1985 [Carcia1985, Carcia1988] sont beaucoup étudiées [Jonhson1995]. Également, des multicouches de Co/Gd et Co/Tb sont impliquées dans des dispositifs à base de Co/Pt. Des études en cours portent une attention particulière sur l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) [Dzyaloshinsky1958, Moriya1960]. Cette interaction provient d'un couplage d'échange antisymétrique à l'interface entre deux atomes de Co par l'intermédiaire d'un atome lourd [Quinsat2017]. Elle est à l'origine des états d'aimantation complexes dans des couches à base de Co/Pt, tels que des vortex ou des skyrmions [Jung2021].

Mon début de carrière dans la recherche a coïncidé avec l'essor de l'électronique de spin au tournant de l'an 2000. J'ai participé et contribué au développement d'expériences dans



plusieurs laboratoires, progressivement en tant que technicien, assistant ingénieur et ingénieur d'étude. J'ai été associé à de nombreuses études sur l'élaboration de matériaux et l'analyse de leurs propriétés. Concernant des systèmes et nanostructures à base de Co en particulier, j'ai participé à des travaux fort importants sur CoFeB/MgO, Co/Ni, Co/Pd, etc [c.f. **Mes contributions scientifiques**]. Pour simplification et clarté du manuscrit, je ne développerai pas ici ces études.

J'ai souhaité décrire dans ce manuscrit les travaux de recherche que je mène depuis fin 2015 à l'Université de BEIHANG (Université de l'Aéronautique et l'Aérospatiale de Pékin). C'est à partir de la fin 2015 que j'ai pris entièrement l'initiative et l'autonomie de réaliser et mener des projets d'expériences et de recherche, en tant qu'ingénieur de recherche d'abord et chercheur ensuite.

Ma mission initiale et la problématique à laquelle je devais répondre peuvent se formuler ainsi : en nous basant sur la connaissance de l'époque sur les couches à anisotropie magnétique, pourrions-nous développer un bloc à multicouches à l'aide des instruments existants à Beihang, afin de créer de nouveaux dispositifs mémoires et des capteurs plus performants sur divers types de supports (substrats souples, substrats rigides, substrats cristallins ou amorphes) ? Avec l'entier soutien de la direction et des collègues de BEIHANG (BEIHANG-IRC, Pékin), j'ai piloté le développement et la mise au point de systèmes d'élaboration, de traitements et d'analyse de multicouches magnétiques. Il s'agit ici non seulement de réaliser et mettre au point des montages, mais aussi développer des études et mener des projets : accompagner des étudiants dans leurs projets de thèse ou de master, par exemple sur des systèmes CoFeB/MgO, Co/Ni, Co/Pt, IrMn, VO<sub>2</sub>, etc ; rédiger des projets pour obtenir des financements en tant que « Foreign expert » et gérer ensuite le bon déroulement des projets. Suite au succès de cette mission, j'ai été appelé à participer à la création de deux nouveaux laboratoires dans deux annexes de BEIHANG (Hefei Innovation Research Center, Hefei, province Anhui et Beihang Qingdao Institut, Qingdao, province Shandong).

Il existe plusieurs technologies d'élaboration des matériaux pour réaliser les couches Pt/Co avec une anisotropie magnétique planaire ou perpendiculaire. Disposant d'un système de pulvérisation cathodique, je me suis focalisé sur cette technique. Ces multicouches peuvent être par exemple également réalisées par évaporation par jet moléculaire. L'avantage de la pulvérisation cathodique est sa forte adaptabilité avec le monde industriel. Mes études ont permis de montrer qu'il nous est possible de fabriquer des couches à anisotropie magnétique sur différents substrats

et supports ce qui est un des enjeux importants pour le développement industriel de l'électronique de spin et des nanocapteurs [Velmukar2016], de modifier leur coercivité et de faire varier l'anisotropie en utilisant des traitements notamment le traitement ionique. Ces résultats ont permis d'aboutir aux systèmes Pt/Co/Pt lithographiés ou Pt/Co/Ta, étudiés actuellement dans notre équipe sur la formation de vortex magnétiques et de skyrmions.

Dans la suite de ce manuscrit, je commencerai par poser des éléments de base du magnétisme, nécessaires à la description de mes travaux (Chapitre I). Suivra une description des techniques de caractérisation et d'élaborations que j'ai utilisées (Chapitre II). Je décrirai les principaux systèmes que j'ai réalisés concernant l'élaboration de couches par pulvérisation cathodique, le traitement d'irradiation par ions  $\text{He}^+$  et l'analyse magnéto-optique Kerr (Chapitre III). Dans les trois parties suivantes, mon attention va porter sur des couches ultraminces à base de Pt/Co. J'exposerai tout d'abord les conditions de croissance des couches de Pt/Co sur différents substrats rigides et souples, en relation avec leurs propriétés structurales et magnétiques (Chapitre IV). L'accent sera mis sur l'obtention de l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) des couches ultraminces ( $< 1 \text{ nm}$ ) de Co, ce même sur supports souples en vue d'une intégration dans des dispositifs spintroniques. Je montrerai ensuite différentes voies pour modifier voire moduler l'anisotropie magnétiques des couches à base de Pt/Co, en variant la couche tampon ou la couche de couverture et en multicouches  $[\text{Pt/Co}]_n$  (Chapitre V). Je détaillerai le cas d'une couche tampon de  $\text{VO}_2$  qui permet de moduler la PMA de Pt/Co de façon réversible, à l'aide de la transition de phases de  $\text{VO}_2$  et du couplage interfacial entre  $\text{VO}_2$  et Pt/Co. Je montrerai aussi des résultats préliminaires d'une étude en cours sur une structure Pt/Co/Pt/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ /ITO sur une réduction de la PMA de Pt/Co/Pt en présence d'une accumulation de charges électriques dans la couche de couverture de Pt. Enfin, je décrirai des études sur le couplage d'échange interfacial entre Co et des atomes de métal lourd ou une couche d'oxyde (Chapitre VI). D'une structure Pt/Co/Pt vers celles Pt/Co/métal lourd ou Pt/Co/oxyde brisant ainsi la symétrie des interfaces autour de Co, on peut espérer d'exalter l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya susceptible d'engendrer une texture d'aimantations chirale. Je montrerai par microscopie Kerr l'effet du champ magnétique perpendiculaire assisté d'un champ transverse sur la propagation de parois de domaines révélant ainsi la chiralité des aimantations dans ces structures. Je tirerai des conclusions issues de mes études et donnerai des perspectives pour de futurs développements.

# I. Eléments du magnétisme

Dans ce chapitre, je vais fournir des éléments de base du magnétisme utiles au sujet de ma recherche et des explications succinctes des effets. Une compréhension plus poussée peut être trouvée dans des ouvrages tels que ceux de Etienne Trémolet de Lacheisserie [Lacheisserie1999].

Les électrons sont les principaux porteurs du moment magnétique, le moment magnétique du noyau étant 3 ordres de grandeur plus faible. L'électron gravitant autour du noyau peut être vu comme une boucle de courant induisant un moment magnétique. Une trajectoire ou orbitale électronique est quantifiée et possède un moment angulaire  $\mathbf{L}$ , avec  $L$  un entier. Le moment magnétique  $\boldsymbol{\mu}_{\text{orb}}$  associé au moment orbital  $\mathbf{L}$  est  $\boldsymbol{\mu}_{\text{orb}} = -\mu_B \mathbf{L}$ , où  $\mu_B = e\hbar/(2m)$  est le magnéton de Bohr avec  $e$  et  $m$  respectivement la charge et la masse de l'électron et  $\hbar$  la constante de Planck. De même, un moment magnétique est associé au spin  $\mathbf{S}$  de l'électron, moment intrinsèque de l'électron. La somme du moment magnétique orbital et du moment magnétique de spin donne le moment magnétique  $\boldsymbol{\mu}$  porté par l'atome :

$$\boldsymbol{\mu} = -\mu_B \mathbf{L} - g_e \mu_B \mathbf{S} \quad (1.1)$$

Où  $g_e$  est le coefficient gyromagnétique de l'électron ( $g_e \sim 2$ ). Cependant, cette description est purement atomique et s'applique dans un matériau, par exemple un isolant, où les moments orbitaux et de spin sont bien définis par rapport à un atome. Pour un métal où les électrons de conduction sont délocalisés, les moments orbitaux et de spin, ainsi que les moments magnétiques, doivent être considérés dans la structure électronique du métal. Pour des métaux de transition, cela conduit à un moment magnétique de  $2.3\mu_B$  par atome de fer en moyenne,  $1.8\mu_B$  par atome de cobalt et  $0.6\mu_B$  par atome de nickel.

L'état magnétique du matériau résulte de l'interaction entre les moments magnétiques élémentaires et avec le champ magnétique extérieur. Il est ainsi nécessaire de connaître ces interactions et les énergies qui leur sont associées.

## I.1 Energie magnétique

L'énergie magnétique totale peut être décrite comme :

$$E = E_{zee} + E_{ex} + E_a + E_{ms} \quad (1.2)$$

Ainsi, l'état d'aimantation dépend d'un équilibre de différents termes d'énergie : l'énergie d'interaction avec le champ magnétique externe ( $E_{zee}$ ), appelée énergie Zeeman, l'énergie d'échange ( $E_{ex}$ ), l'énergie due à l'anisotropie ( $E_a$ ) et l'énergie d'interaction magnétostatique ( $E_{ms}$ ).

### 1.1.1 Energie Zeeman

La densité d'énergie volumique Zeeman correspond à l'énergie d'un moment magnétique dans un champ magnétique appliqué. Cette énergie est exprimée par :

$$E_{zee} = - \mu_0 \mathbf{H} \cdot \mathbf{M} \quad (1.3)$$

Où  $\mathbf{M}$  représente la densité d'aimantation du matériau et  $\mathbf{H}$  le champ magnétique externe appliqué. C'est cette interaction qui permet à l'aiguille d'une boussole de s'aligner sur le champ magnétique terrestre.

### 1.1.2 Energie d'échange

L'effet d'échange est un effet quantique entre deux particules indiscernables, lorsque leurs fonctions d'onde se chevauchent. Dans le cas de deux électrons voisins de spins  $\mathbf{S}_i$  et  $\mathbf{S}_j$  et en vertu du principe d'exclusion de Pauli, l'état parallèle de leurs spins implique une fonction d'onde globale spatialement antisymétrique et l'état antiparallèle une fonction d'onde symétrique. L'énergie d'échange  $E_{ex}$  correspond à la différence d'énergies entre ces deux états :

$$E_{ex} = - 2 J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (1.4)$$

La constante  $J$  est appelée l'intégrale d'échange entre les deux électrons voisins. Sa valeur décroît rapidement avec la distance séparant les électrons. Lorsque  $J$  est positif, les moments magnétiques tendent à s'aligner et on dit alors que le matériau est ferromagnétique (Fig.I.1). Quand  $J$  est négatif et tous les moments magnétiques ont une valeur égale, les aimantations des atomes voisins sont antiparallèles et se compensent. Le matériau est dit antiferromagnétique. Quand  $J$  est négatif mais que les moments magnétiques voisins ont des valeurs différentes, les aimantations des atomes voisins sont antiparallèles et ne se compensent pas entièrement. Le matériau est dit ferrimagnétique.

L'interaction d'échange tendant à ordonner magnétiquement le matériau, elle est en compétition directe avec la température. Quand l'énergie thermique domine l'interaction d'échange, le matériau devient paramagnétique. La température de transition de l'état ferromagnétique (ou ferrimagnétique) à l'état paramagnétique se nomme la température de Curie. On appelle la température de Néel, quand elle marque la transition de l'état antiferromagnétique à l'état paramagnétique.

Le paramagnétisme désigne en magnétisme le comportement d'un milieu matériel qui ne possède pas d'aimantation spontanée mais qui, sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, acquiert une aimantation dirigée dans le même sens que ce champ d'excitation. Un matériau paramagnétique possède donc une susceptibilité magnétique de valeur positive (contrairement aux matériaux diamagnétiques), en général assez faible. Cette aimantation disparaît lorsque le champ d'excitation est coupé, il n'y a donc pas de phénomène d'hysteresis comme pour le ferromagnétisme.

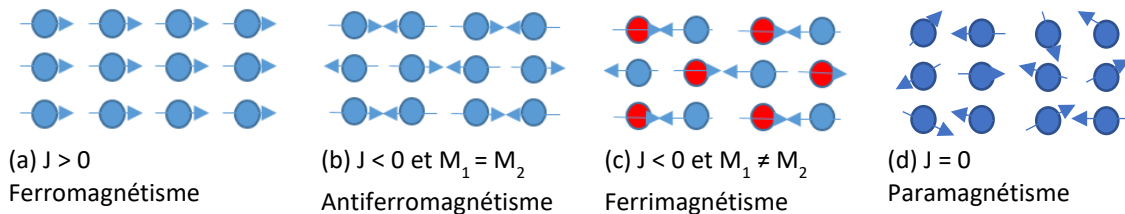


Figure I.1 – Quatre types d'ordre magnétique les plus courants : ferromagnétisme (a), antiferromagnétisme (b), ferrimagnétisme (c) et paramagnétisme (d).

Pour quantifier la force d'échange dans un matériau ferromagnétique, il est nécessaire de transcrire la constante de couplage local  $J$  pour deux voisins en une constante de couplage globale  $A$  par rapport à la densité d'aimantation du matériau. On utilise le plus souvent une expression semi-classique de l'énergie d'échange  $E_{ex}$  avec les moments magnétiques voisins  $\mathbf{M}_i$  et  $\mathbf{M}_j$  au lieu de l'expression (1.4) sous la forme :

$$E_{ex} \propto -2 \mathbf{M}_i \cdot \mathbf{M}_j / M^2 = -2 \cos(\theta_{ij}) \approx \theta_{ij}^2 + \text{constante} \quad (1.5)$$

Où  $\theta_{ij}$  est l'écart angulaire entre les deux moments voisins  $\mathbf{M}_i$  et  $\mathbf{M}_j$ . Les expressions (1.4) et (1.5) veulent dire que tout écart à l'état parallèle de deux moments voisins augmente l'énergie d'échange dans un matériau ferromagnétique. En description continue, l'écart angulaire  $\theta_{ij}$  discret est remplacé par le gradient de l'orientation des moments :

$$E_{\text{ex}} = A (\nabla \mathbf{M} / M)^2 \quad (1.6)$$

Le coefficient d'échange  $A$  du matériau est équivalent à  $J$ , à un coefficient de proportionnalité près. Pour les métaux de transition Fe, Co et Ni, les valeurs de  $A$  sont de 19,8, 28,1 et  $8,6 \times 10^{-12}$  J/m, respectivement.

### 1.1.3 Energie d'anisotropie

Les aimantations dans un matériau ferromagnétique s'alignent suivant des directions préférentielles en absence d'un champ extérieur. Ce phénomène est appelé anisotropie magnétique. L'anisotropie peut être causée par la forme de l'échantillon, la structure cristalline du matériau et l'état de déformation du matériau. Le contrôle de l'anisotropie magnétique est crucial pour la conception d'application utilisant des propriétés magnétiques. Dans le cas du stockage de l'information, les matériaux utilisés présentent le plus souvent deux directions faciles d'aimantation stables et opposées en l'absence de perturbation extérieure. L'anisotropie est dite uniaxiale. On considère alors une constante d'anisotropie uniaxiale effective  $K_{\text{eff}}$  issue des différents effets. L'énergie d'anisotropie par unité de volume pour le cas uniaxial peut alors s'écrire sous la forme :

$$E_a = K_{\text{eff}} \sin^2\theta \quad \text{avec} \quad K_{\text{eff}} = 1/2 \mu_0 H_k M_s \quad (1.7)$$

L'énergie d'anisotropie  $E_a$  varie en fonction de l'angle  $\theta$  entre l'aimantation  $\mathbf{M}$  et l'axe facile d'aimantation. La constante d'anisotropie  $K_{\text{eff}}$  s'exprime de façon équivalente en champ d'anisotropie  $H_k$ , champ minimum nécessaire pour amener l'aimantation jusqu'à sa valeur de saturation  $M_s$  suivant la direction difficile d'aimantation.

Dans des films minces ou des nano-objets, la surface peut avoir un effet non-négligeable devant le volume. On décompose alors  $K_{\text{eff}}$  en contributions volumique et surfaciques [Ikeda2010, Watanabe2016, Zhang2017] :

$$K_{\text{eff}} = K_v + 2 K_s / t \quad (1.8)$$

$K_v$  regroupe les termes d'anisotropie dépendant du volume et  $K_s$  ceux dépendant de la surface et de l'interface.  $t$  est l'épaisseur du film. Le plus souvent, les aimantations ont tendance à s'aligner dans le plan du film et l'effet de surface tend à orienter les aimantations hors plan. C'est-à-dire que  $K_v$  et  $K_s$  sont de signes opposés. On peut alors définir une épaisseur critique  $t_c = -2K_s/K_v$  pour apprécier l'importance relative de la surface par rapport au volume. Pour les matériaux usuels, les épaisseurs

critiques  $t_c$  sont nanométriques. Pour un film très mince ( $t < t_c$ ), l'anisotropie due à la surface ( $K_s$ ) devient prépondérante et l'axe facile d'aimantation est perpendiculaire au plan du film. Pour un film épais ( $t > t_c$ ), l'anisotropie due au volume ( $K_v$ ) domine et l'axe facile d'aimantation est dans le plan du film.

#### a) Anisotropie de forme

Dans les couches minces, la source d'anisotropie la plus directe est leur forme. Les moments magnétiques interagissent entre eux *via* l'interaction dipolaire. L'alignement de deux moments est favorisé dans la direction qui rejoint les deux moments et l'état antiparallèle favorisé pour deux moments côte-à-côte. Il faut souligner que l'interaction dipolaire est de longue portée. Par conséquent, il faut faire le bilan de toutes les interactions dipolaires internes pour déterminer l'anisotropie. Pour un objet de forme quelconque, le calcul se fait seulement numériquement. Mais, qualitativement, les aimantations ont tendance à s'aligner suivant la grande longueur de l'objet. Pour un ellipsoïde, le calcul peut être fait analytiquement et la somme des interactions dipolaires internes est modélisée par un champ effectif  $\mathbf{H}_d$  appelé champ démagnétisant :

$$\mathbf{H}_d = - (N) \mathbf{M} \quad (1.9)$$

Où  $N$  est un tenseur dépendant de la forme de l'objet. Pour une couche mince qui est équivalente à un sphéroïde infiniment aplati, tous les coefficients sont nuls sauf celui hors plan :  $N_x \equiv N_{xx} = 0$ ,  $N_y \equiv N_{yy} = 0$  et  $N_z \equiv N_{zz} = 1$ . On peut alors modéliser cet effet par un terme d'anisotropie de forme  $K_d = 1/2 \mu_0 M_s^2$ , en l'incluant dans  $K_v$ , puisqu'il agit d'un terme en énergie volumique.

#### b) Anisotropie magnétocristalline

Dans les matériaux magnétiques cristallisés, l'environnement local vu par un moment magnétique va induire des axes d'anisotropie particuliers. Les orbitales électroniques d'un atome magnétique dans un cristal subissent des interactions électrostatiques dues à la distribution des charges de l'environnement. Ce phénomène peut être modélisé par un champ électrique dit champ cristallin. Dans un métal de transition magnétique tel que le cobalt, le nickel ou le fer, les orbitaux 3d interagissent fortement et sont fortement liées aux axes cristallins (énergie de l'ordre de 1 eV). Le couplage spin-orbite entre le moment orbital et le spin va lier le moment magnétique de spin, principal contributeur au magnétisme dans de tels métaux, aux axes cristallins. L'anisotropie induite est dite magnétocristalline. Pour Co qui a une structure hexagonale, la direction facile

d'aimantation est celle de l'axe  $c$  et les directions difficiles sont dans le plan de base (sans direction privilégiée). La densité d'énergie d'anisotropie ( $E_{mc}$ ) est donnée par :

$$E_{mc} = K_1 \sin^2\theta + K_2 \sin^4\theta + K_3 \sin^6\theta \dots \quad (1.10)$$

Où  $\theta$  est l'angle entre l'aimantation et l'axe hexagonal. En ne considérant que le terme du premier ordre  $K_1$ , on peut alors intégrer l'anisotropie magnétocristalline dans  $K_v$  comme un effet volumique.

### c) Anisotropie magnétoélastique

L'anisotropie magnétoélastique résulte de la déformation dans le matériau. Le moment magnétique étant fortement lié aux orbitales électroniques, toute déformation du réseau cristallin induit une modification des propriétés magnétiques et peut même altérer la direction facile d'aimantation du matériau. L'énergie par unité de volume induite par la déformation s'exprime par :

$$E_{me} = K_{me} \sin^2 \theta \quad \text{avec} \quad K_{me} = 3/2 \lambda Y \varepsilon \quad (1.11)$$

Où  $\lambda$  est la constante de magnétostriction,  $Y$  le module d'Young et  $\varepsilon$  la différence des déformations suivant l'axe facile d'aimantation et l'axe difficile. Bien que les constantes magnétoélastiques puissent être grandes, l'énergie d'anisotropie magnétoélastique est très faible par rapport aux autres contributions dans des films de faible épaisseur ( $\sim 3-5$  nm).

Pour un film épitaxié sur un substrat, il existe diverses sources de contraintes et de déformation, telles que processus de dépôt, différence en dilatation thermique entre le film et le substrat et désaccord de paramètres de maille. Un grand désaccord de paramètres dans l'épitaxie induit de fortes contraintes dans le film. Pour des films très minces, les paramètres de maille du film dans le plan sont imposés par ceux du substrat. On dit alors que l'épitaxie est pseudomorphique et la déformation induite dans le film est le désaccord de paramètres de maille  $\eta$ .

L'état de contraintes et de déformation évolue en fonction de l'épaisseur du film  $t$ . En effet, les contraintes peuvent relaxer au-delà d'une certaine épaisseur critique  $h_c$  [Johnson1996]. Ainsi, pour un film épais ( $t > h_c$ ) relaxé, on peut considérer que seule la partie d'interface est sous contrainte et déformée et que la contribution magnétoélastique devient surfacique. Par conséquent, l'anisotropie magnétoélastique est volumique pour un film très mince ( $t < h_c$ ) et surfacique pour un



film épais ( $t > h_c$ ) relaxé, avec les constantes d'anisotropie magnétoélastiques  $K_{me}$  suivantes [Chappert1988] :

$$\begin{aligned} K_{me} &= 3/2 \lambda Y \eta & (t < h_c) \\ K_{me} &= 3/2 \lambda Y \eta h_c/t & (t > h_c) \end{aligned} \quad (1.12)$$

#### d) Anisotropies de surface et d'interface

Dans les multicouches (Co/NM), les interfaces jouent un rôle important. Elles permettent de changer l'environnement local des atomes magnétiques et donc de changer les propriétés physiques du matériau. La brisure de symétrie à la surface du film (ou à son interface avec un autre composé) peut créer une forte anisotropie de surface (ou d'interface). Cette symétrie réduite aux interfaces fait apparaître une anisotropie [Néel1954]. Un atome de cobalt de surface va avoir un nombre de voisins réduit, ce qui conduit à une modification des bandes 3d et à une séparation des niveaux d'énergie des orbitales hors plan et des orbitales dans le plan.

Bruno a démontré que l'hybridation des orbitales 3d du cobalt avec les orbitales du platine produit une anisotropie magnétique perpendiculaire au film [Bruno1989a, Bruno1989b]. Cette anisotropie est d'autant plus grande que le couplage spin-orbite des atomes de métaux lourds est important et lève lui aussi la dégénérescence des orbitales électroniques, en favorisant celles hors plan. Il faut noter que l'hybridation des orbitales électroniques dépend également des contraintes induites dans les couches [Kyuno1996]. En choisissant judicieusement le matériau non magnétique (par exemple Pd, Pt, Au) en contact avec le cobalt, il est donc possible de changer l'axe facile d'aimantation d'une couche mince et d'aboutir à une anisotropie perpendiculaire. Il faut rappeler que la contribution de l'anisotropie de surface ou d'interface est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche mince et devient primordiale dans des couches ultraminces.

## I.2 Autres couplages d'échange

### I.2.1 Couplage d'échange indirect (RKKY)

Dans un empilement FM/NM/FM, un couplage d'échange peut avoir lieu entre les deux couches FM, même en absence de défauts structuraux. Le couplage résulte d'une polarisation des

électrons de la couche NM au contact des couches FM. Dans un matériau NM massif, une impureté magnétique va polariser les électrons de conduction du matériau NM dans son voisinage et créer un déséquilibre des densités d'électrons de spin up et de spin down. Cette polarisation oscille avec une période  $2k_F$  (où  $k_F$  est le vecteur d'onde de Fermi) et s'atténue en  $1/r^3$  où  $r$  est la distance par rapport à l'impureté. Ces oscillations sont dites de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida [Ruderman1954, Kasuya1956, Yosida1957]. Si deux impuretés magnétiques sont présentes dans le matériau non magnétique, l'interaction entre les deux ondes de polarisation va coupler indirectement les deux moments magnétiques, ferromagnétiquement ou antiferromagnétiquement selon la distance qui les sépare. Dans le cas de multicouches FM/NM/FM, le même type d'interaction est présent. Les couches magnétiques induisent une polarisation oscillante des électrons de conduction de NM. Le couplage entre les deux couches FM oscille avec l'épaisseur de la couche NM.

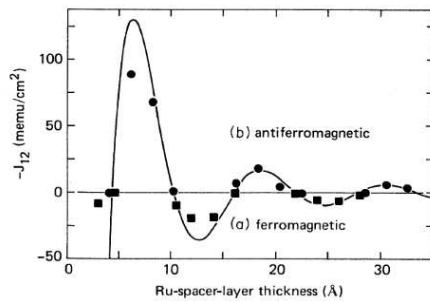


Figure I.2 – Couplage RKKY mesuré sur une tricouche FM/NM/FM (CoNi/Ru/CoNi) en fonction de l'épaisseur de la couche NM (Ru) [Parkin1991a].

Ce genre d'empilement est une brique de base essentielle dans les jonctions tunnel. L'utilisation de tricouches FM/NM/FM présentant un couplage antiferromagnétique permet de diminuer fortement les champs magnétiques rayonnés dans des structures submicroniques. En effet, dans la configuration antiparallèle, le champ rayonné par une couche est fortement réduit par le champ rayonné par la seconde couche.

### 1.2.2 Couplage d'échange antisymétrique (DMI)

Un terme supplémentaire dans l'énergie d'échange, appelé interaction Dzyaloshiinskii-Moryia (DMI), est étudié en détail depuis une quinzaine d'années pour mieux appréhender les structures de parois de domaine et des textures d'aimantations [Dzyaloshinsky1958, Moriya1960]. L'interaction modifie l'énergie des parois de domaines dans des couches ultraminces et favorise une structure de paroi Néel notamment. Le principe de DMI est illustré en figure I.3 et l'énergie s'écrit sous la forme :

$$E_{\text{DMI}} = \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \quad (1.13)$$

$\mathbf{D}_{ij}$  est un vecteur caractérisant la force et la direction de l'interaction. Cette interaction apparaît lorsqu'une brisure de symétrie est présente, comme à une interface. Elle est renforcée si l'atome non-magnétique intervenant dans l'interaction est lourd avec un fort couplage spin-orbite. L'importance de la DMI dans les empilements magnétiques ultrafins n'a été envisagée que récemment [Bode2007].

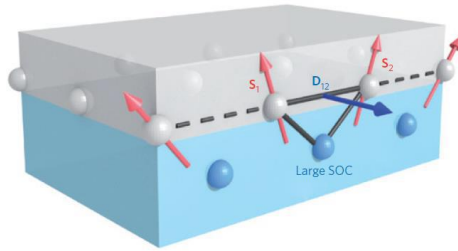


Figure I.3. Illustration de l'interaction Dzyaloshinskii-Moryia à l'interface FM/NM entre deux atomes magnétiques (en gris) et un atome non-magnétique lourd (en bleu) à fort couplage spin-orbite [Fert2013].

Contrairement à l'échange usuel qui est symétrique, l'interaction DMI est antisymétrique par permutations de spins  $\mathbf{S}_1$  et  $\mathbf{S}_2$ . On parle alors d'interaction chirale. Cette propriété s'étend aux textures magnétiques qui apparaissent en présence de DMI, qui sont également dites chirales : parois de Néel [Chen2013] ou skyrmions [Mühlbauer2009]. D'origine interfaciale, la densité d'énergie DMI varie comme l'inverse de l'épaisseur  $t$  de la couche. On définit la constante  $D$  de DMI par rapport aux aimantations au lieu de  $\mathbf{D}_{ij}$  local par rapport aux spins, au même titre que le coefficient d'échange  $A$  vis-à-vis de l'intégrale d'échange  $J$ . La valeur et le signe de  $D$  dépendent des matériaux situés de part et d'autre de l'interface et de la symétrie locale. L'ordre de grandeur de  $D$  pour le couple Co/Pt est de  $10^{-3} \text{ J/m}^2$ . Pour une couche ultramince de 1 nm d'épaisseur de Co, la raideur d'échange induite ( $D \times t$ ) est donc de l'ordre de  $10^{-12} \text{ J/m}$ , ce qui est un ordre de grandeur plus faible que l'échange direct représenté par le coefficient d'échange de Co ( $A = 28.1 \cdot 10^{-12} \text{ J/m}$ ). La DMI est donc un terme de second ordre par rapport à l'échange direct, mais elle est l'ingrédient indispensable dans le désalignement des moments voisins et à l'origine de l'apparition de textures d'aimantations complexe dans des couches ultraminces.

Bode a démontré que la microscopie par effet tunnel (STM) polarisé en spins permet de déterminer la nature des parois dans les matériaux ferromagnétiques [Bode2003]. En utilisant cette technique, Bihlmayer *et al.* ont apporté une preuve expérimentale que la DMI change la nature des parois, forçant l'existence de parois de Néel dans 2 monocouches de Fe sur une surface de W(110) [Bihlmayer2008]. Ainsi, dans des films ultra-minces et en absence de DMI, les parois de Bloch sont énergétiquement plus favorables que les parois de Néel. En présence de DMI, des parois de

Néel peuvent être générées. En fonction du signe de  $D$ , des parois Néel gauches ou droites sont favorisées. Nous aurons alors à faire à des déplacements de parois asymétriques, dépendant du signe de  $D$ .

### I.3 Renversement de l'aimantation et propagation de parois

Le renversement de l'aimantation d'un matériau ferromagnétique induit par le champ magnétique peut se produire de différentes façons selon les échelles spatiales du système. Au niveau microscopique, le renversement de l'aimantation est induit par la précession de l'aimantation autour du champ magnétique ainsi que l'amortissement de cette précession. Au niveau mésoscopique, ce même type de comportement peut se retrouver pour des particules de taille nanométrique dans lesquels les moments magnétiques sont fortement couplés par échange [Ferré2001]. Enfin au niveau macroscopique, le renversement de l'aimantation s'effectue par nucléation de domaines et propagation de parois.

#### I.3.1 Cycles d'hystérèse

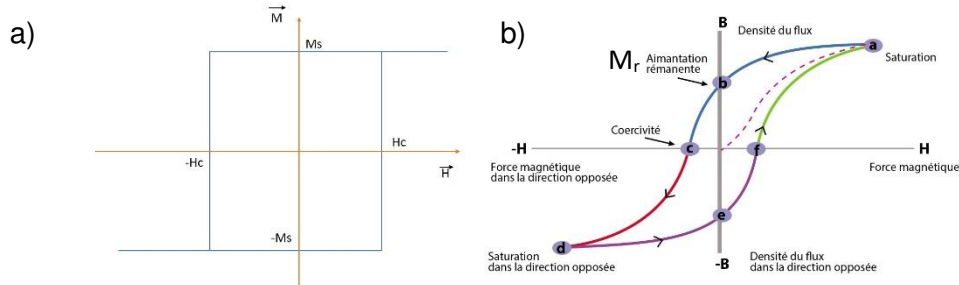


Figure I.4. Cycles d'hystérésis. a) Cas uniaxial idéal avec le champ  $H$  appliqué suivant l'axe facile d'aimantation et le mode de renversement uniforme d'aimantation [Stoner1948] :  $M_s$ , aimantation à saturation et  $H_c$ , champ coercitif. b) Cas général observé avec un mode de renversement progressif :  $H_s$ , champ de saturation nécessaire pour saturer l'aimantation de l'échantillon et  $M_r$ , aimantation rémanente en annulant le champ à partir de la saturation.

En soumettant un matériau ferromagnétique à un cycle de champ magnétique extérieur  $H$  suffisamment fort et en mesurant l'aimantation du matériau  $M$  jusqu'à sa saturation, on obtient un cycle d'hystérésis  $M(H)$  (Fig.I.4). Dans le cas uniaxial et en appliquant le champ suivant l'axe

facile, le cycle d'hystérésis a une forme rectangulaire (Fig.I.4(a)), caractérisée par un champ coercitif  $H_c$  où l'aimantation bascule d'un état de saturation moins ( $-M_s$ ) à celui de plus ( $+M_s$ ). Le champ coercitif  $H_c$  est lié à la constante d'anisotropie  $K_{\text{eff}}$ , puisque c'est le champ nécessaire pour que l'énergie Zeeman dépasse la barrière d'énergie d'anisotropie :  $\mu_0 H_c M_s / V = 2K_{\text{eff}}$  où  $V$  est le volume de l'échantillon. Cependant, on observe le plus souvent des cycles d'hystérésis avec des allures progressives (Fig.I.4(b)). Cela voudrait dire que toute l'aimantation ne bascule pas en général de façon cohérente et soudaine suivant le modèle de Stoner-Wohlfarth [Stoner1948], mais de façon progressive avec nucléation et propagation de domaines magnétiques.

### I.3.2 Parois de domaine

L'aimantation d'un domaine magnétique est orientée suivant une direction particulière et suivant un axe d'anisotropie facile d'aimantation, en absence de champ extérieur. Une paroi de domaines marque le passage d'une zone aimantée à une autre. Deux types de parois sont bien définies pour le cas uniaxial : paroi de Bloch où l'orientation des moments magnétiques change graduellement d'un domaine à l'autre dans le plan de la paroi en accomplissant une rotation de  $\pi$  et paroi de Néel où le changement se fait avec les aimantations dans un même plan (Fig.I.5). L'énergie totale  $\gamma$  par unité de surface emmagasinée dans une paroi est la somme de l'énergie d'échange du fait du désalignement des moments les uns des autres et l'énergie d'anisotropie du fait de la déviation des moments par rapport à l'axe facile. Pour une paroi de longueur  $\delta$  et de section  $S$ , le gradient des écarts angulaires des moments est de l'ordre de  $\pi/\delta$  en moyenne et l'énergie d'échange s'échelonne en  $\approx A(\pi/\delta)^2 \delta S$ . C'est-à-dire que l'échange favorise une paroi large. Au contraire, l'énergie d'anisotropie croît avec la longueur de paroi en  $K_{\text{eff}} \langle \sin^2\theta \rangle \delta S = K_{\text{eff}}/2 \delta S$ . L'anisotropie favorise une paroi étroite. La compétition entre les deux effets détermine la longueur d'une paroi et un calcul exact conduit à :

$$\delta = \pi\sqrt{A/K_{\text{eff}}} \quad \text{et} \quad \gamma = 4\sqrt{AK_{\text{eff}}} \quad (1.14)$$

Si  $K_{\text{eff}}$  ne comprend que le terme  $K_1$  magnétocristallin de Co pour le cas de Co massif, la longueur  $\delta$  d'une paroi de Bloch est de 25,9 nm.

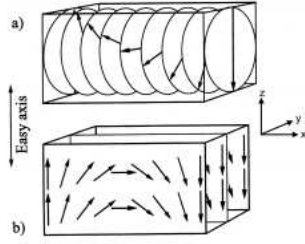


Figure I.5. Parois de domaines [Fukumoto2006]. (a) Paroi de Bloch où la rotation de 180° des aimantations (flèches) a lieu dans le plan de la paroi. (b) Paroi de Néel où la rotation se fait avec les aimantations dans le même plan.

### 1.3.3 Précession et rotation

En présence d'un champ magnétique appliqué, les moments magnétiques effectuent un mouvement de précession autour du champ effectif local et subissent un amortissement aboutissant à terme leur alignement avec le champ. Ce mouvement précessionnel est décrit par l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) [Landau1992, Gilbert1956, Gilbert2004] :

$$d\mathbf{M}/dt = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + (\alpha / M_S) \mathbf{M} \times d\mathbf{M}/dt \quad (1.15)$$

$\gamma_0$  est le facteur gyromagnétique et  $\alpha$  le facteur d'amortissement. Le premier terme décrit la précession de l'aimantation autour du champ magnétique effectif. Le second terme rend compte de l'amortissement de l'aimantation. Si le champ effectif est antiparallèle à l'aimantation, la précession de l'aimantation est accompagnée d'un renversement, d'autant plus rapidement que le facteur d'amortissement  $\alpha$  est grand. On peut aussi exploiter la précession pour renverser l'aimantation en appliquant un pulse de champ magnétique perpendiculaire à l'aimantation, juste le temps pour que l'aimantation tourne de 180°. Le retournement précessionnel est donc très intéressant pour des applications nécessitant une très grande vitesse d'écriture.

### 1.3.4 Nucléation de domaines et propagation de paroi

Lors d'un retournement inhomogène, le renversement de l'aimantation est initié par la nucléation de domaines inverses. La nucléation a en général lieu dans les régions où l'anisotropie est réduite par rapport au reste de l'échantillon. Les centres de nucléation sont généralement situés sur des défauts extrinsèques. Dans le cas de domaines cylindriques comme ceux que l'on trouve dans les systèmes à forte anisotropie perpendiculaire, l'énergie libre d'un domaine magnétique est donnée par :

$$E = 2\pi r t \gamma - 2\pi r^2 t \mu_0 H M_S \quad (1.16)$$

Où  $r$  est le rayon du domaine et  $t$  l'épaisseur de la couche magnétique [Mangin1997, Moritz2005]. Le premier terme exprime l'énergie de la paroi et le deuxième l'énergie Zeeman dans le

renversement du domaine. Cette expression n'est valable que dans un matériau magnétique idéal. Pour un matériau réel, il est nécessaire d'ajouter un terme prenant en compte le piégeage des parois par des défauts présents dans l'échantillon (dislocations, marches atomiques, *etc.*) qui induisent des variations d'anisotropie et de l'énergie de paroi. À chaque défaut est associée une énergie de barrière représentant l'énergie qu'il faut fournir au système pour dépiéger la paroi.

La description jusqu'ici de cycles d'hystérésis et de parois de domaine constitue une vision globale et statique de l'aimantation d'un échantillon. Pour étudier la dynamique de l'aimantation, il est nécessaire de définir plus précisément la structure interne d'une paroi et d'étudier son mouvement selon l'équation LLG. Dans une couche mince d'anisotropie perpendiculaire, on peut repérer l'orientation de l'aimantation dans une paroi par l'angle d'inclinaison  $\theta$  par rapport à l'axe d'anisotropie vertical et l'angle d'azimut  $\phi$  (Fig.I.6). Ainsi, la variation en  $\theta$  avec  $\phi = 0$  le long de la paroi décrit une paroi de Bloch et la variation en  $\theta$  avec  $\phi = \pi/2$  une paroi de Néel.

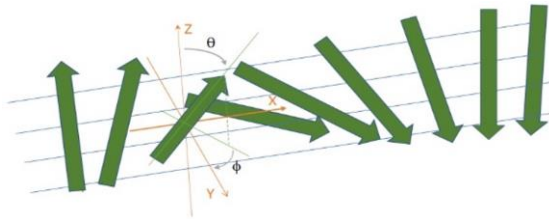


Figure I.6. Structure interne d'une paroi dans une couche mince d'anisotropie perpendiculaire. L'orientation d'un moment (flèche) est repérée par son angle d'inclinaison  $\theta$  par rapport à l'axe d'anisotropie (axe z) et son angle d'azimut  $\phi$  par à l'axe y qui est dans le plan de la paroi.

L'aimantation moyenne dans une paroi de Bloch est dans le plan de la couche et orientée à  $\theta = \pi/2$  et  $\phi = 0$ . Un champ  $H_z$  appliqué suivant la normale de la couche met la paroi en mouvement et exerce un couple azimutal déviant les aimantations de la configuration de Bloch. L'intégration spatiale sur la paroi de l'équation LLG aboutit aux équations de Slonczewski reliant la vitesse de propagation  $v$  de la paroi, l'angle azimutal  $\phi$  de l'aimantation et sa variation dans le temps  $\dot{\phi}$  [Slonczewski1972] :

$$\begin{aligned} \dot{\phi} + \alpha v / \delta &= \gamma \mu_0 H_z \\ \dot{v} / \delta - \alpha \dot{\phi} &= \gamma \mu_0 H_K \sin(2\phi) / 2 \end{aligned} \quad (1.17)$$

$H_K$  est le champ d'anisotropie dû au champ démagnétisant dans la paroi et s'interprète comme le champ magnétique devant être appliqué sur la paroi de Bloch pour qu'elle devienne une paroi de Néel. Pour de faibles champs  $H_z$ , il existe une solution pour lequel  $\phi$  est constant :  $\sin(2\phi) = (2/\alpha)(H_z/H_K)$ . Dans ce cas, le champ démagnétisant dans la paroi s'oppose à la déformation de la paroi induite par la précession liée au champ appliqué. La paroi garde alors un angle interne  $\phi$  constant en avançant. Le régime est qualifié de « mouvement stationnaire », avec une vitesse de propagation

constante et proportionnelle au champ :  $v = \mu H_z$  (Fig.I.7). Le terme de proportionnalité  $\mu = \gamma\delta/\alpha$  est appelé la mobilité de la paroi. Au-dessus d'un champ critique dénommé champ de Walker  $H_w = \alpha H_K / 2$ , c'est l'instabilité [Schryer1974]. Dans ce régime turbulent, le champ démagnétisant de la paroi n'est pas suffisant pour contrer le couple de précession dû au champ magnétique appliqué et la paroi avance en se déformant continument ( $\dot{\phi} \neq 0$ ). Ce régime est caractérisé par une chute de la vitesse de propagation en fonction du champ appliqué (ou une mobilité négative). La vitesse de propagation recommence à augmenter linéairement avec  $H_z$  pour des valeurs de champ plus élevées, mais avec une mobilité plus faible que celle dans le régime stationnaire :  $v = \gamma\delta\alpha/(1+\alpha^2) \mu_0 H_z$  ou  $\mu = \gamma\delta\alpha/(1+\alpha^2)$  (pour  $H_z \gg H_w$ ). Ce régime visqueux est dit de « propagation précessionnelle ». L'énergie apportée par le champ magnétique est suffisamment élevée pour franchir les barrières d'énergie associées aux inhomogénéités dans l'échantillon.

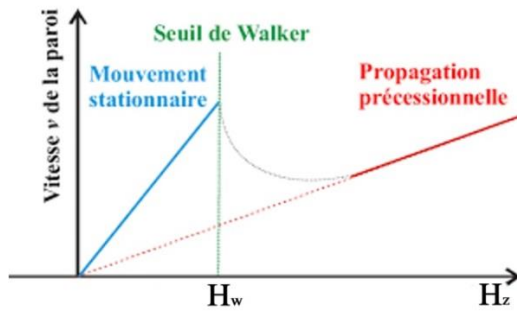


Figure I.7. Régimes de propagation de parois de domaines dans le cas d'un échantillon sans défauts.

Dans le cas de couches minces avec des défauts (Fig.I.8), le régime de propagation des parois de domaines est différent de celui décrit dans la figure I.7. Il peut se décomposer en 3 parties : régime de fluage (creep), régime de dépiégeage (depinning) et régime d'écoulement (flow) [Metaxas2007].

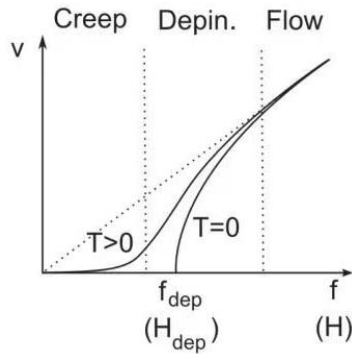


Figure I.8. Vitesse ( $v$ ) de propagation de parois de domaines magnétiques soumis à un champ magnétique ( $H$ ) ou à une force motrice ( $f$ ) dans le cas d'un échantillon avec défauts et à la température nulle ( $T = 0$  K) et non nulle ( $T > 0$  K) : régimes de fluage (Creep), de dépiégeage (Depinning) et d'écoulement (Flow).



### I.3.5 Caractérisation de la propagation de parois de domaine

L'analyse de la nucléation de domaines magnétiques et de la propagation de parois de domaines permet d'explorer l'anisotropie magnétique et les barrières d'énergies internes dans un échantillon. Dans les équations de Slonczewski de propagation d'une paroi (Expression (1.17)), le rôle des défauts est implicitement incorporé dans le facteur d'amortissement  $\alpha$ , facteur qu'on peut extraire de la mesure de la vitesse de propagation de parois. Avec de faibles champs appliqués, le déplacement des parois se fait par sauts avec un mouvement de type reptation (domain wall creep) [Lemerle1998]. Les parois doivent franchir, par activation thermique, des barrières d'énergie associées aux centres de piégeage, ce qui peut donner lieu à des domaines de forme irrégulière.

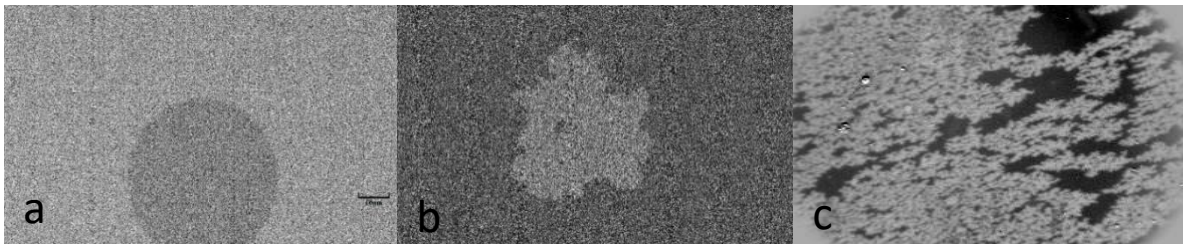


Figure I.9. Images de microscopie Kerr de domaines magnétiques où les aimantations up et down sont contrastées. a) Domaine homogène et symétrique dans un empilement de Ta/Pt/Co/Pt irradié.

b) Domaine inhomogène et irrégulier dans Ta/Pt/Co/Pt. c) Domaines dendritiques dans Ta(1) / Pt(3) / Co(0.3) / [Pt(0.7) / Co(x)]<sub>4</sub> / Pt(3).

En utilisant la microscopie Kerr (*c.f.* Chap.II), il est possible de visualiser les domaines et de déterminer les vitesses et le type des déplacements de parois. Les domaines peuvent être homogènes, dendritiques, symétriques ou asymétriques (Fig.I.9). L'imagerie Kerr résolue en temps permet de mesurer le taux de nucléation de domaines et les vitesses de déplacements de parois. Dans des couches de Pt/Co/Pt/IrMn, Pizzini *et al.* ont établi une mobilité de parois  $\mu$  jusqu'à 0.2 m/s/Oe et montré que la nucléation de domaines est corrélée avec la vitesse de propagation de parois (Fig.I.10) [Pizzini2006]. Dans des nanofils à base de NiFe/Cu/NiFe, Ono *et al.* ont pu traquer la position des parois dans des nanofils à l'aide d'une tête GMR et déterminer une mobilité de l'ordre de 2.6 m/s/Oe à 100 et 160 K [Ono1999]. Dans des nanofils de NiFe, Atkinson *et al.* ont mesuré par effet Kerr une grande mobilité de parois d'environ 31 m/s/Oe à l'ambiante [Atkinson2003]. Tous ces moyens d'analyse permettent d'accéder à des informations sur des mécanismes sous-jacents et des défauts concernant la nucléation, le piégeage et la propagation de domaines dans des couches magnétiques.

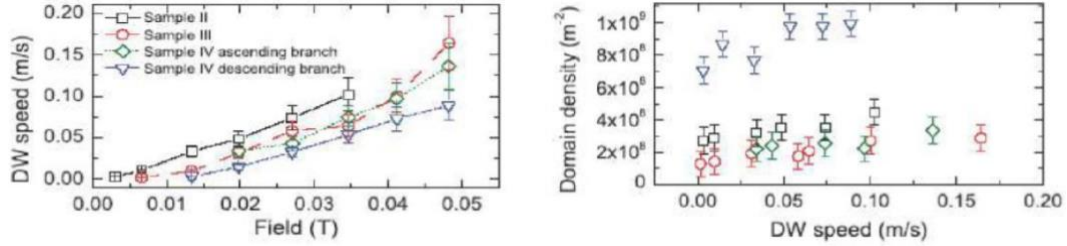


Figure I.10. Vitesse de propagation de parois en fonction du champ (gauche) et corrélation entre la densité de domaines et la vitesse de propagation de parois (droite) dans des couches Pt/Co/Pt/IrMn [Pizzini2006].

## II. Croissance, traitements et caractérisations de couches minces

*Une couche mince est un matériau déposé sur un substrat sous forme de film. Le matériau peut être d'un élément pur ou d'alliage. L'épaisseur de films varie suivant les procédés utilisés, typiquement de la monocouche atomique jusqu'à quelques micromètres. Il existe de nombreuses techniques pour élaborer des couches minces, soit de type chimique (dépôt en phase vapeur, électrodéposition) ou physique (évaporation par jets moléculaires, pulvérisation cathodique...). Le choix de la technique dépend de la qualité et de l'épaisseur du film mince voulues et des contraintes économiques.*

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser au dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique, à leurs caractérisations et également à une méthode novatrice pour ajuster les propriétés physiques après dépôt : **irradiation ionique**. Il ne faut pas confondre l'**irradiation ionique** et l'**implantation ionique**. L'**implantation** est une technique très employée, par exemple, dans le domaine des semiconducteurs. Elle consiste à ajouter de la matière à une couche mince, par exemple en dopages, pour en modifier les propriétés physiques. L'**irradiation** est une technique qui, quant à elle, vise à modifier la structure de la couche mince afin d'en changer les propriétés physiques, mais sans ajout de matière à la différence de l'implantation, car les ions ne font que traverser la couche mince. Cette méthode permet de réaliser des traitements après l'élaboration de couches minces, dans le but de créer, modifier ou guérir des défauts dans les couches minces, notamment des défauts ponctuels.

## II.1 Croissance par pulvérisation cathodique

La technique de dépôt par pulvérisation cathodique repose sur le principe de la génération d'un plasma au-dessus d'une cible, évaporant ainsi de la matière de la cible vers un support. Dans ce procédé, l'enceinte de dépôt est sous ultravide ( $< 10^{-8}$  mbar) et en vide secondaire en conditions de dépôt (typiquement  $10^{-6}$  mbar). Un gaz neutre d'une grande pureté ( $> 99,999\%$ ), typiquement l'argon (Ar), est introduit près de la cible composée du matériau à déposer. Une tension de décharge est appliquée entre la cible (la cathode) et le substrat (l'anode), permettant d'obtenir un plasma stable à la surface de la cible. Cette technique a pour avantage de ne pas nécessiter de chauffage de la cible et l'énergie des atomes émis est de 1 à 100 eV. Cette dernière est ajustable, soit par la variation du potentiel au niveau du substrat (tension de polarisation) permettant d'augmenter l'énergie des ions issus du plasma, soit par l'augmentation de la pression de travail (argon) permettant de réduire l'énergie moyenne déposée par atome. La pression en gaz Ar minimale permettant de maintenir le plasma est de  $10^{-3}$  mbar. La pression peut être augmentée jusqu'à quelques  $10^{-1}$  mbar. Le taux d'ionisation typique des plasmas froids à décharge lumineuse est de quelques pour cent. Il existe plusieurs types de pulvérisation cathodique.

- Pulvérisation triode

Pour faciliter l'alimentation du plasma en électrons additionnels, on peut ajouter un filament chaud jouant le rôle d'une anode (3<sup>ème</sup> électrode pour le plasma). En appliquant une polarisation négative au fil par rapport au plasma, on éjecte les électrons émis thermiquement par celui-ci. Il faut maintenir cette tension aussi faible que possible pour limiter la pulvérisation du filament (ce qui correspond environ à 10 à 50V). Cette technique permet de réduire la pression de travail et/ou réduire la puissance d'alimentation du plasma par la cible.

- Pulvérisation avec anode polarisée

Pour contrôler l'intensité du bombardement (directement lié au taux de déposition) du substrat, au lieu de le mettre en contact avec les parois de la chambre (à la terre), on lui applique une tension. En ajustant ce potentiel, on contrôle le bombardement par les ions ou les électrons.

- Pulvérisation par faisceau d'ions (IBS)

C'est une méthode dans laquelle la cible est extérieure à la source ionique. Une source peut fonctionner sans aucun champ magnétique. Dans une source Kaufman, des ions sont générés par collision avec des électrons confinés dans un champ magnétique comme dans un magnétron. Ils sont alors accélérés par le champ électrique émanant d'une grille, vers une cible. Lorsque les ions quittent la source, ils sont neutralisés par les électrons provenant d'un second filament. L'IBS présente des avantages, car l'énergie et le flux d'ions peuvent être contrôlés indépendamment. Comme le flux qui frappe la cible se compose d'atomes neutres, des cibles conductrices ou isolantes peuvent être pulvérisées.

- Pulvérisation cathodique magnétron

Pour la technique de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron (Figure II-1), des aimants sont introduits en dessous de la cathode de manière à augmenter la vitesse de dépôt. Les énergies associées à la pulvérisation magnétron varient de quelques eV jusqu'à la centaine d'eV. En plus de l'action sur la pression de travail d'argon et la tension de polarisation du substrat, il est aussi possible de piloter l'énergie déposée sur le substrat en décompensant les lignes de champs magnétiques, ce qui a pour effet d'augmenter la densité des ions le frappant, donc d'augmenter la vitesse de dépôt. Des taux d'ionisation de cinq fois supérieurs à la pulvérisation cathodique sont alors atteints. C'est cette technique qui est utilisée dans les équipements que j'ai installés dans l'équipe Nomade, à l'IRC, NSTC. Typiquement, les vitesses de dépôts sont ajustables entre  $\sim 0,01$  et  $\sim 2 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ces vitesses dépendent aussi du matériau, de la distance cible-échantillon et de la pression de travail. La température de l'échantillon peut être contrôlée par un four indépendamment des conditions de dépôt. Pour des conditions de dépôts énergétiques, les films obtenus sont denses, quelles que soient les espèces déposées.

Une des limitations de cette technique apparaît avec des cibles magnétiques (Fe, Ni, Co, et leurs alliages magnétiques). Pour que le plasma soit stabilisé dans des conditions de pression et de puissance couramment utilisées, les cibles magnétiques doivent être très fines (1 à 2 mm). Pour des semiconducteurs ou isolants, la technique requiert l'usage de sources d'alimentation radiofréquence (RF à 13,56 MHz) pour éviter le phénomène d'auto-polarisation de la cible et maintenir un plasma stable. La vitesse de dépôt par RF d'isolants est beaucoup plus faible (de 2 à 10 fois selon les matériaux) que les dépôts de matériaux conducteurs.

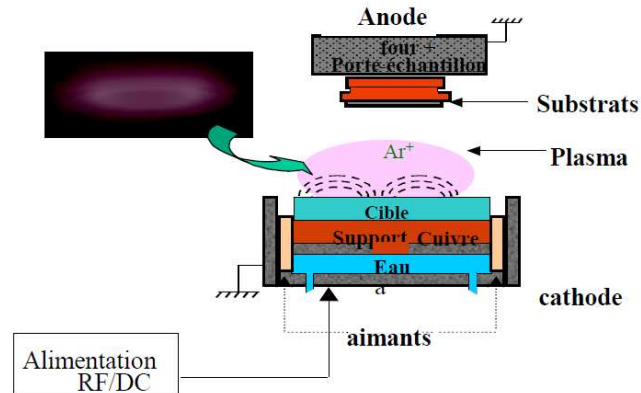


Figure II-1. Schéma de principe de la pulvérisation cathodique magnétron.

Le procédé magnétron, par rapport à la pulvérisation diode, permet d'abaisser la pression de travail aux alentours de  $10^{-4}$  mbar. Additionnée à une réduction de la taille de la gaine cathodique, cette diminution de la pression de dépôt entraîne une large augmentation du libre parcours moyen des ions. Par conséquent, leur énergie s'en trouve considérablement accrue et il en résulte une augmentation du rendement de pulvérisation ainsi que de l'énergie cinétique des espèces déposées. La vitesse de dépôt est améliorée d'un facteur 10 environ et le contrôle des propriétés structurales des films est beaucoup plus large. Enfin, le procédé magnétron permet de travailler, pour un courant de cible équivalent, à des tensions appliquées plus faibles. L'augmentation du libre parcours moyen permet également de réduire la possibilité de réaction des espèces lors du trajet cible-échantillon et d'obtenir une baisse de la pollution des couches minces, avec l'amélioration du vide de travail.

## II.2 Modes de croissance de couches minces

Les couches minces concernées ici sont d'épaisseurs de l'angström à quelques dizaines de micromètre. Une très faible épaisseur de couches minces entraîne une modification de propriétés physiques. La différence essentielle entre le matériau à l'état massif et à l'état de couche mince est en effet liée au fait que, dans l'état massif, le rôle des limites dans les propriétés peut être négligé, tandis que, dans une couche mince, ce sont au contraire les effets liés aux surfaces limites qui peuvent jouer un rôle prépondérant. Par conséquent, plus l'épaisseur de la couche mince sera faible et plus cet effet de dimensionnalité sera exacerbé. Inversement, lorsque l'épaisseur d'une couche mince dépassera un certain seuil, les effets de surface et d'interface deviennent mineurs et le matériau retrouvera les propriétés bien connues du matériau massif. La seconde caractéristique essentielle d'une couche mince est que quelle que soit la procédure employée pour sa fabrication, une couche mince est toujours solidaire d'un support (substrat) sur lequel elle est construite. En conséquence, il sera impératif de tenir compte de ce fait majeur dans la conception, à savoir que le support influence très fortement les propriétés structurales de la couche. Ainsi, une couche mince d'un même matériau et de même épaisseur pourra avoir des propriétés physiques sensiblement différentes selon qu'elle sera déposée sur un substrat rigide amorphe, cristallin ou un substrat souple.

Expérimentalement, dans le cas des couches minces élaborées par apport continu de matière sur un substrat, trois modes de croissance [Levy1996] (Fig. II.2) sont généralement observés : le mode bidimensionnel Frank-Van der Merwe, où le matériau se dépose couche atomique par couche atomique sur le substrat, le mode tridimensionnel Volmer-Weber, où le matériau croît en îlots sur le substrat, et le mode mixte Stranski-Krastanov qui commence par une croissance 2D puis 3D au-delà d'une certaine épaisseur critique. Ce qui détermine le mode de croissance, ce sont les énergies de surface du substrat et du matériau, mais également l'énergie d'interface entre le substrat et le matériau et l'énergie d'adhésion.

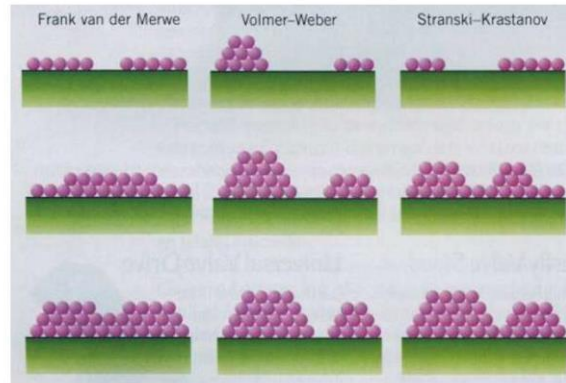


Figure II-2. Trois modes de croissance d'une couche mince : mode bidimensionnel couche par couche Frank-Van der Merwe (gauche), mode tridimensionnel Volmer-Weber (centre) et mode mixte Stranski-Krastanov (droite) [Levy1996].

### II.3 Traitement thermique

Les traitements thermiques sont utilisés pour améliorer les propriétés physicochimiques des couches minces selon les besoins technologiques. Le recuit peut être effectué à une température bien définie à l'air, sous vide ou dans une atmosphère de gaz, pendant un temps qui varie selon les propriétés des couches minces et qui est suivi par un refroidissement lent ou rapide en fonctions des propriétés voulues. Cette étape permet de modifier la cristallisation du film, l'état des interfaces entre deux couches minces et des propriétés physiques telles que la résistivité électrique, l'anisotropie magnétique. Notre système de recuit est un système sous vide pouvant monter jusque 800°C. Il y est également possible d'appliquer un champ magnétique planaire ou perpendiculaire à l'échantillon jusqu'à 1 Tesla.

### II.4 Traitement par irradiation

L'irradiation ionique vise à modifier la structure d'une couche mince afin d'en changer les propriétés physiques. Elle apparaît en effet comme un outil permettant de modifier de façon contrôlée des propriétés électriques, magnétiques et optiques des matériaux. L'irradiation ionique étant un processus hors-équilibre, elle peut permettre de contrôler les diagrammes de phase ou de franchir des barrières de potentiel pour amener le système dans un état voulu [Bernas2003].

Quand on irradie un matériau, on le modifie en déplaçant des atomes, en brisant des liaisons chimiques, en créant d'autres liaisons, en incorporant des impuretés, etc. Ces modifications peuvent avoir lieu à l'échelle atomique et jusqu'à l'échelle macroscopique. À l'échelle atomique, un défaut

ponctuel, lacune ou interstitiel, correspond à une modification de l'ordre local qui permet par exemple une mobilité accrue (rôle central dans les mécanismes de diffusion par exemple) ou l'apparition de nouveaux états électroniques, qui peuvent avoir une grande importance pour les propriétés physiques [Hayes1985]. Dans les cristaux ioniques par exemple, la présence d'une lacune modifie localement la charge électrique et s'accompagne donc de la présence d'états électroniques (ou de trous) localisés. L'irradiation ionique entraîne une migration des défauts qui peuvent soit s'annihiler sur des surfaces libres, soit s'agréger pour former des défauts étendus plus stables.

Il est donc essentiel de connaître les mécanismes d'interaction entre des ions et la matière dans la gamme d'énergies concernées par l'irradiation ionique [Lindhard1963]. Les ions étant chargés positivement ou négativement, il faut donc analyser l'évolution de leur énergie potentielle en entrant dans une cible. Tout au long du parcours des ions dans la cible par la suite, il faut tenir compte de leur masse et leur énergie cinétique. Dans le cas des ions lourds avec une masse du même ordre de grandeur que celle des atomes de la cible, l'énergie transférée est importante. Lorsque les ions sont complètement stoppés, c'est-à-dire toute leur énergie cinétique transmise, on parle alors de l'implantation. Pour des ions incidents légers, l'énergie transmise est très faible et il n'y a que très rarement des chocs entre un atome collisionné et un de ses voisins. On parle alors de l'irradiation. De tels ions ont un long parcours moyen au sein du matériau. Dans le cas des couches minces, ils vont s'implanter dans le substrat, au-delà de la couche mince.

#### II.4.1 Interaction entre l'ion et une surface

L'énergie potentielle d'un ion, somme des énergies d'ionisation, est rapidement perdue, lorsque l'ion pénètre dans le matériau. En effet, l'ion capture des électrons du matériau qui se désexcitent en émettant à leur tour des électrons ou des photons, engendrant ainsi une élévation de la température locale de l'échantillon. A basse énergie, ce phénomène se produit sur de faibles épaisseurs, de l'ordre de quelques nanomètres, et peut induire de l'amorphisation, de la pulvérisation et du réarrangement structural du matériau. Dépendant du matériau et du type d'ions incidents utilisé, de tels dommages sont causés au matériau pour des énergies des ions de l'ordre de quelques dizaines de keV.



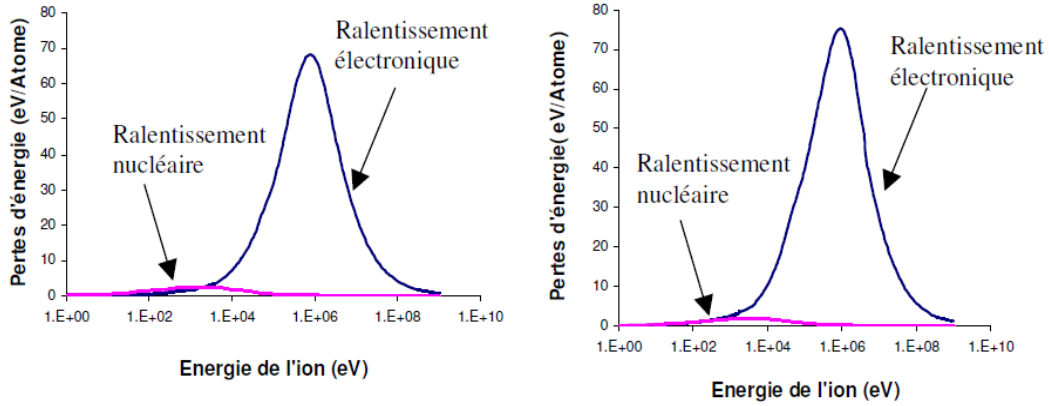


Figure II.3. Valeurs de ralentissement lors de l'irradiation d'une cible de palladium (à gauche) et d'une cible de manganèse (à droite) par des ions légers d'hélium d'énergie variable. (Simulations effectuées avec le logiciel SRIM)

Le risque de pulvériser une surface lors de l'irradiation est évaluée par la perte d'énergie de l'ion incident, hélium ici, en fonction du type d'atomes de la cible. On distingue l'interaction de l'ion avec le cortège électronique de l'atome cible, le ralentissement électronique, et l'interaction avec le noyau de l'atome cible, le ralentissement nucléaire. La figure II.3 montre les ralentissements d'ions He par des atomes de palladium et de manganèse, en fonction de l'énergie incidente. L'interaction électronique est maximale pour des ions d'énergie de l'ordre de MeV. Dans le cas des ions légers de faibles énergies (5-30 keV), le rendement de pulvérisation est très faible. Nous utilisons des ions He<sup>+</sup> dans cette gamme d'énergie pour les traitements par irradiation de nos échantillons.

L'endommagement de la surface par le processus peut être étudié en détail par AFM, en observant l'évolution de la rugosité de surface en fonction de l'énergie et du dosage d'ions incidents. Devolder *et al.* ont comparé l'effet de l'irradiation sur une couche de Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> par des ions Ga<sup>+</sup> de 28 keV et des ions He<sup>+</sup> de 30 keV, à des fluences respectivement de 10<sup>15</sup> Ga<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> et 10<sup>17</sup> He<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> [Devolder2000,2000a]. Il a été montré que dans le cas des ions lourds, la surface est dégradée significativement et la rugosité pic à pic passe de 6 à 12 Å. En ce qui concerne les ions légers, même à des fluences énormes, la surface n'a pas été altérée significativement. La rugosité pic à pic reste de l'ordre de 6 Å et la rugosité quadratique moyenne passe de 2,1 à 2,6 Å. Ceci est en accord avec le faible rendement de pulvérisation par des ions légers. Cette capacité des ions légers à laisser inchangée la rugosité de surface irradiée est un atout important le traitement de couches magnétiques.

## II.4.2 Interaction le long du parcours de l'ion dans une couche mince

L'ion perd son énergie cinétique tout au long de son parcours dans la couche mince. Ces pertes sont engendrées par des collisions avec les noyaux et les électrons des atomes cibles. On décrit le phénomène par le pouvoir d'arrêt  $dE/dz$ , taux de perte de son énergie cinétique  $E$  en fonction de la profondeur  $z$  dans la couche mince. Dans ce pouvoir d'arrêt, il faut distinguer deux contributions, celle des collisions nucléaires où l'énergie cinétique de l'ion est transmise à un noyau atomique et celle des collisions électroniques dans lesquelles l'énergie cinétique est transférée aux électrons qui s'excitent ou sont éjectés de l'atome (ionisation). Le pouvoir d'arrêt peut alors s'écrire :  $dE/dz = dE/dz|_{\text{nucléaire}} + dE/dz|_{\text{électronique}}$ . L'importance relative de ces deux termes varie avec l'énergie et le numéro atomique de l'ion incident. Le pouvoir d'arrêt nucléaire prédomine, lorsque l'énergie cinétique est basse et que le numéro atomique du projectile est élevé. Dans ce cas, les ions interagissent principalement avec les noyaux des atomes cibles. Les collisions sont élastiques et la trajectoire de l'ion est fortement modifiée. A l'inverse, le pouvoir d'arrêt électronique prédomine, si l'énergie cinétique du projectile est élevée et le numéro atomique de l'ion est faible. Les ions incidents interagissent alors principalement avec les électrons de la matière. Ces collisions sont inélastiques et la trajectoire de l'ion est faiblement modifiée. Deux parcours calculés d'ions de xénon à haute énergie (600 keV) et d'hélium à plus faible énergie (30 keV) sont montrés en figure II.4. On observe que le parcours d'ions à haute énergie est plus rectiligne au début de son parcours qu'à la fin (Fig. II.4a). C'est-à-dire que l'interaction dominante passe de celle électronique à celle nucléaire sur le parcours. Pour les ions à plus faible énergie (Fig. II.4b), le parcours est plus en zig-zag et l'interaction nucléaire devient importante. En d'autres termes, les transferts de l'énergie cinétique de l'ion aux atomes sont importants. Il faut par conséquent examiner en détails les collisions élastiques dans le processus et analyser les modifications structurales qui en résultent dans la couche mince.

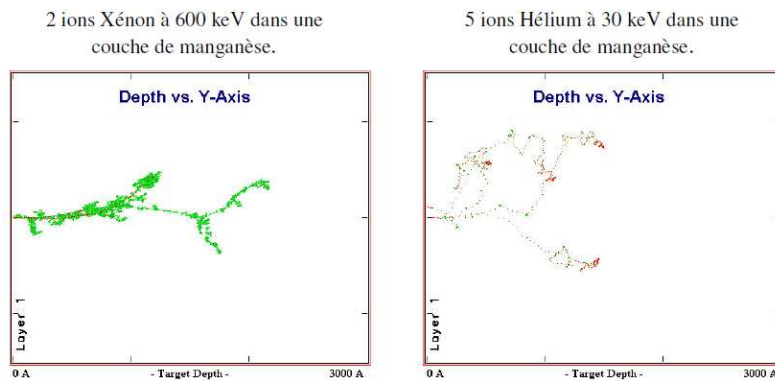


Figure II.4. Parcours d'ions de xénon de 600 keV (gauche) et d'hélium de 30 keV (droite) dans une couche de manganèse. (Simulations effectuées avec le logiciel SRIM).

### II.4.3 Modifications structurales du matériau par irradiation

Les collisions nucléaires étant élastiques, elles engendrent un transfert partiel de l'énergie cinétique de l'ion incident aux atomes de la cible. Si l'énergie transférée à l'atome cible dépasse l'énergie critique de déplacement, celui-ci peut être expulsé de son site initial en créant généralement une paire de défauts ponctuels de type lacune / atome interstitiel, appelée aussi défauts de Frenkel (Fig. II.5). L'atome déplacé peut posséder une énergie suffisante pour engendrer à son tour, par collision élastique, le déplacement d'autres atomes. Ces collisions sont qualifiées de secondaires et nous parlons alors de cascades de collisions au sein du matériau irradié. L'utilisation d'ions légers de faible énergie permet justement d'éviter des cascades de collisions et l'endommagement ou l'amorphisation du matériau.

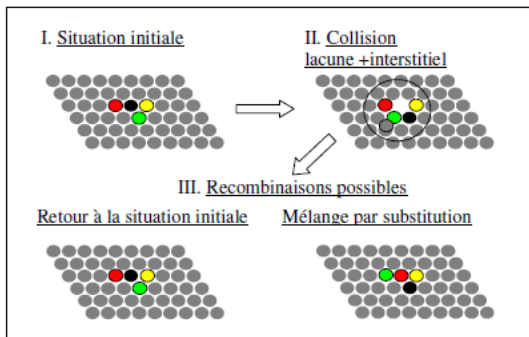


Figure II.5. Création d'un défaut en une paire lacune/interstitiel, lors d'un choc subi par l'atome marqué noir (II) à partir de la situation initiale (I) et recombinaisons possibles (III) avec le retour à la situation initiale ou à un mélange par substitution. Le cercle représente le volume de recombinaison spontanée

Le retour à l'équilibre de la configuration avec un défaut ainsi créé dépend de l'énergie transférée lors de la collision. Si cette énergie est trop faible, l'atome revient alors à sa position initiale et comble la lacune. Si cette énergie est suffisamment élevée pour éloigner l'atome de la lacune, alors il faut considérer la position d'arrêt de l'interstitiel par rapport au rayon du volume de recombinaison. Il y a recombinaison si l'interstitiel se trouve dans ce volume, sinon l'interstitiel est suffisamment éloigné de la lacune et le défaut est stable. Certaines recombinaisons annihilent les défauts ponctuels, mais n'éliminent pas le mélange par substitution d'atomes.

Deux autres paramètres importants sont le flux d'ions et la température de recuit. Un flux important augmente les créations de défauts (sursaturation en lacunes) et une température élevée accélère les processus de diffusion. Le matériau risque alors d'être amorphisé. Une température trop faible n'active pas la diffusion des atomes et les défauts ne peuvent pas guérir. Le cas d'un empilement de couches minces est délicat, du fait qu'il faut considérer le désordre et des défauts

créés à l'interface entre couches par irradiation et des phénomènes d'interdiffusion par recuit. En contrôlant précisément les deux paramètres, flux d'ions et température, on peut choisir un régime de travail optimal pour l'irradiation et le recuit (Fig. II.6).

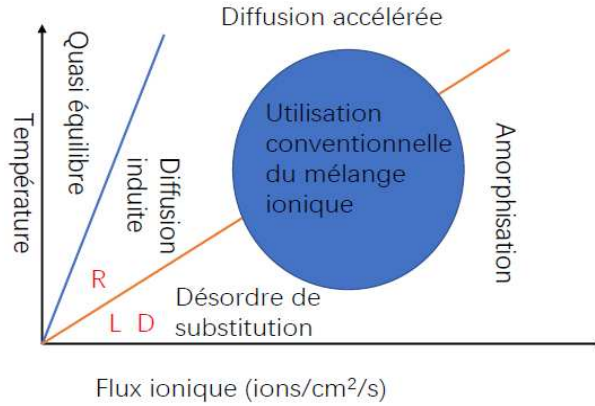


Figure II.6. : Effets de l'irradiation en fonction de la température d'irradiation et du flux ionique. Des régimes sont labélisés par L [LeBoitié1988], R [Ravelosona2001] et D [Devolder1999].

Il faut mentionner également le phénomène de canalisation, lorsque les ions sont dirigés strictement suivant un axe cristallin du matériau, c'est-à-dire suivant des colonnes atomiques. Les ions sont alors canalisés entre les colonnes atomiques. Dans ce cas, le freinage nucléaire est pratiquement inexistant pour les ions canalisés [Pfister1966]. L'effet de canalisation est d'autant plus fort que les ions sont plus petits. L'orientation du cristal par rapport au faisceau incident est donc très importante. Afin d'éviter ce phénomène indésirable dans le cas où l'interaction ions-cible est recherchée, il faut désorienter l'échantillon de quelques degrés pour ne pas travailler en incidence normale ou suivant une autre direction cristalline du matériau.

## II.5 Caractérisations structurales

### II.5.1 Diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X (XRD) permet de déterminer les distances et orientations de plans réticulaires et la déformation dans une couche mince. Si le faisceau des rayons X est à l'angle d'incidence  $\theta_B$  appelé angle de Bragg par rapport à une série de plans, alors le faisceau est diffracté

à l'angle  $2\theta_B$  par rapport au faisceau incident. Dans ces conditions en effet, les ondes des rayons X réfléchies sont en phase et leur interférence constructive (Fig. II.7). C'est la loi de Bragg,  $\lambda = 2d \sin\theta$ , avec  $\lambda$  longueur d'onde des rayons X et  $d$  distance réticulaire des plans.

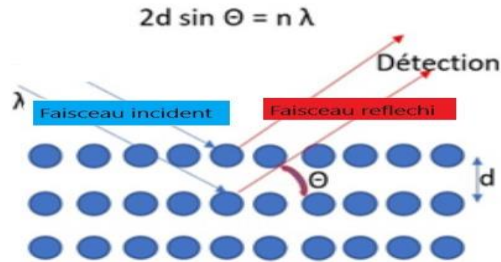


Figure II.7. Schéma de principe de diffraction des rayons X.

Le diffractogramme enregistre l'intensité diffractée en fonction de l'angle de diffraction  $2\theta$ . L'étude du diffractogramme permet de remonter à un grand nombre d'informations sur les caractéristiques structurales et microstructurales de l'échantillon (Fig. II.8). L'ensemble des pics renseigne sur les phases cristallines présentes et indique des orientations préférentielles (textures) de la couche mince. La position  $P$  d'un pic donne directement la distance réticulaire du plan cristallin concerné et par conséquent la déformation dans l'échantillon. La proportion d'une phase ou d'une texture est reflétée par l'intensité intégrée, surface ( $S$ ) du pic. La taille des domaines est inversement proportionnelle à la largeur  $L$  du pic.

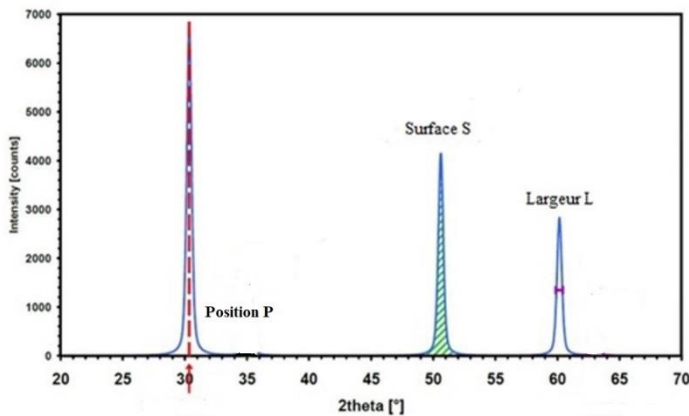


Figure II.8. Diffractogramme XRD : la position ( $P$ ) d'un pic donne la distance réticulaire du plan et la déformation ; l'intensité intégrée ( $S$ ) d'un pic est relative à la proportion de la phase cristalline et de la texture ; la largeur ( $L$ ) du pic est inversement proportionnelle à la longueur cohérente d'un domaine.

### II.5.2 Réflectivité des rayons X

La réflectivité des rayons X (XRR) est la réflexion miroir des rayons X sur une surface. Cette technique sans contact et non destructive permet de déterminer l'épaisseur, la densité et la rugosité de surface d'une couche mince, et la rugosité d'interface entre la couche mince et le

substrat. A très faibles angles d'incidence, la réflexion des rayons X est totale. C'est-à-dire que les ondes des rayons X ne se propagent plus dans le matériau et deviennent évanescentes suivant la profondeur de l'échantillon. L'angle limite pour ce régime est appelé l'angle critique et dépend de la densité du matériau. Au-dessus de l'angle critique, les ondes des rayons X se propagent dans la couche mince et donnent lieu à des interférences. Cela se traduit par des oscillations d'intensités en réflectivité. La périodicité angulaire des oscillations est inversement proportionnelle à l'épaisseur du film. La vitesse de chute d'intensité en fonction de l'angle d'incidence est liée à la rugosité du film. L'amplitude des oscillations est proportionnelle à la différence des densités massiques entre la couche mince et le substrat, et inversement proportionnelle aux rugosités (Fig.II.9).

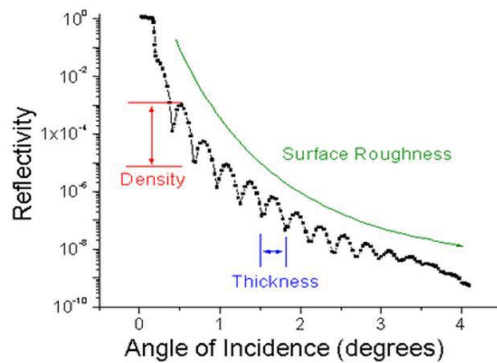


Figure II.9. Courbe de réflectivité des rayons X typique d'un film simple sur un substrat. Les périodes d'oscillations sont proportionnelles en  $1/t$  et les amplitudes d'oscillation dépendent des densités et des rugosités.

### II.5.3 Microscopie à force atomique

Parmi les différentes techniques d'imagerie en champ proche, on trouve la microscopie à force atomique (AFM). Cette méthode se base sur les forces entre une pointe et les atomes d'un échantillon. Cela consiste à déplacer un levier surmonté d'une pointe à la surface de l'échantillon, l'échantillon étant collé sur un système piézoélectrique qui permet alors de translater l'échantillon et de scanner toute une surface, et de mesurer la déviation verticale du levier sous l'action des forces de contact avec la surface, dans le cas le plus répandu. La mesure de la déviation verticale se fait dans notre cas par détection optique, ce qui nous permet d'obtenir une résolution de 0,1nm en hauteur. L'extrémité du levier, soumise à l'action des forces atomiques, est éclairée par un faisceau laser dont on détecte la déflexion au moyen d'un détecteur à quatre cadrans (Fig. II.10). Les forces mises en jeu dans ce type de microscope sont typiquement de l'ordre de  $10^{-7}$  à  $10^{-9}$  Newton.

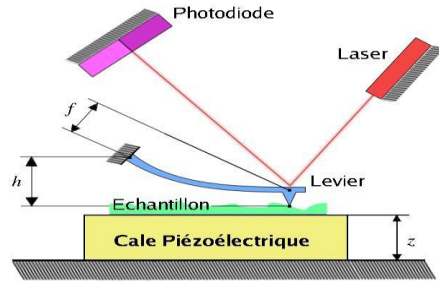


Figure II.10. Principe de l'AFM.

Cette technique permet de faire une image topologique de la surface et de mesurer l'épaisseur d'une couche très mince (Fig.II.11). On distingue deux modes principaux de fonctionnement. Pour le mode contact, la sonde et l'échantillon sont en contact en permanence. Les scans sont réalisés à force constante. On conserve une déflexion constante grâce à une boucle de rétroaction qui modifie l'altitude de la pointe par rapport à la surface. L'image est obtenue en suivant l'allongement du tube piézo-électrique. Pour le mode tapping ou non contact, la pointe est mise en vibration par une céramique bimorphe, placée sous le support de la pointe. La mesure est effectuée grâce à la boucle de rétroaction qui maintient l'amplitude de vibration constante durant le scan.

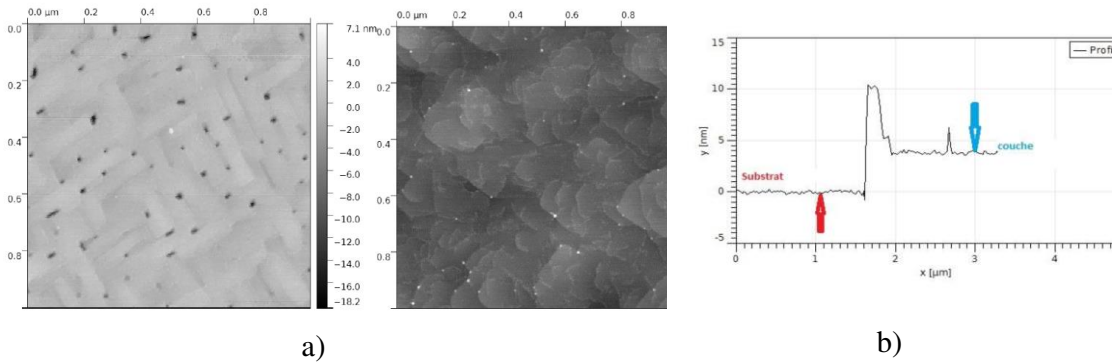


Figure II-11. a) Images AFM de la surface d'une couche de Pt de 80 nm déposée à 800°C (gauche) et à 350°C (droite) sur ZnO. b) Mesure d'épaisseur d'une couche ultramince, entre la partie substrat seule et la partie film sur un échantillon de SiO<sub>2</sub>/Pt

#### II.5.4 Microscopie électronique

La microscopie électronique en transmission (TEM) utilise un faisceau d'électrons à haute tension, généralement à 200 kV. En traversant l'échantillon, l'onde électronique est diffractée par les plans réticulaires de l'échantillon et diffusée élastiquement et inélastiquement. L'interaction

entre le faisceau d'électrons et l'échantillon produit des électrons secondaires et la fluorescence X caractéristique des atomes présents dans l'échantillon. Tous ces signaux peuvent être collectés pour obtenir des informations sur la structure et la composition de l'échantillon. Les échantillons doivent être préparés selon un protocole précis pour obtenir une lame très fine (de 60 à 100 nm), protocole consistant à une découpe mécanique fine de l'échantillon suivie par un polissage et un amincissement ionique.

Similairement aux rayons X, les électrons sont diffractés par un échantillon cristallin. Les faisceaux diffractés sont focalisés dans le plan focal de la lentille objective du microscope après l'échantillon. Grâce aux lentilles intermédiaires, le plan focal de l'objective est envoyé sur l'écran ou le détecteur. Ainsi en mode diffraction du microscope, nous avons directement un diffractogramme local de l'échantillon permettant d'examiner la structure cristalline locale de l'échantillon.

Les faisceaux diffractés et diffusés se recombinent dans le plan image de la lentille objective et reproduisent ainsi l'image des intensités des ondes électroniques à la sortie de l'échantillon. Il existe plusieurs modes d'imagerie. Si on sélectionne au moyen d'un diaphragme dans le plan focal uniquement le faisceau transmis, l'image est appelée « champ clair », étant donné que le vide apparaît clair et l'échantillon sombre. Au contraire, l'image faite avec un faisceau diffracté est appelée « champ sombre », le vide étant cette fois-ci sombre et l'échantillon clair. Le mode d'image à haute résolution (HRTEM) consiste à prendre le faisceau transmis et des faisceaux diffractés. La figure d'interférence résultante restitue directement les périodicités des plans cristallins par les faisceaux diffractés concernés. Les contrastes sur l'image obtenue dépendent de plusieurs facteurs : la propagation des ondes électronique dans l'échantillon, donc le potentiel cristallin de l'échantillon, et les conditions d'imagerie telles que l'orientation de l'échantillon et la fonction de transfert de la lentille objective. Généralement, une simulation d'images HRTEM est nécessaire pour interpréter l'image obtenue et pour déterminer si les colonnes atomiques sont situées sur les points blancs, noirs ou entre les deux. Les images HRTEM nous renseignent sur l'ordre cristallin local de l'échantillon, ainsi que des défauts qui s'y trouvent (joints de grain, dislocations...).



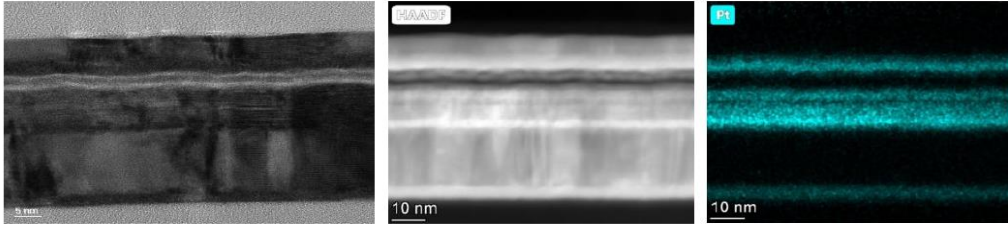


Figure II.12. Images en section transverse de couches  $\text{SiO}_2/\text{Pt}/\text{W}/\text{Ta} / \text{Pt}/\text{Ta}/\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pt}/\text{W}$ . A gauche, image TEM. Au centre, image HAADF sensible aux éléments où les zones claires révèlent les positions des atomes lourds (Pt). A droite, cartographie EDS où les zones intenses en fluorescence X de Pt apparaissent en clair (coloriées en bleu).

Le mode balayage en TEM (STEM) a révolutionné l'imagerie et la cartographie dans un microscope électronique, depuis que les progrès technologiques dans les années 2000 ont rendu possible de focaliser le faisceau d'électrons jusqu'à une taille de l'angström. Il devient alors envisageable de viser une seule colonne atomique avec le faisceau focalisé. Associé au mode de détection HAADF (high angle annular dark-field), la diffusion d'une colonne atomique peut être collectée. En balayant le faisceau incident, on obtient une image ou cartographie de diffusion de la zone qui a la résolution spatiale atomique et en même temps la sensibilité aux éléments chimiques, car les atomes lourds diffusent plus à grands angles que les atomes légers. Quand la spectroscopie X en énergie dispersive (EDS) est associée au mode STEM, les cartographies de fluorescence X émise par les atomes de l'échantillon peuvent aussi atteindre une résolution spatiale atomique, avec la sensibilité à l'atome concerné (Fig. II.12).

## II.6 Caractérisations magnétiques.

### II.6.1 Magnétométrie par effet magnéto-optique Kerr (MOKE)

L'effet magnéto-optique Kerr découvert en 1877 résulte de l'interaction d'une onde électromagnétique (lumière) avec un matériau ferromagnétique. Lorsque la lumière est réfléchie par un matériau ferromagnétique, l'aimantation du matériau impacte la polarisation de l'onde réfléchie, c'est-à-dire la direction du champ électrique de la lumière, et l'amplitude de l'onde. L'aimantation induit ainsi une biréfringence du milieu pour la lumière. Quand une lumière polarisée linéairement est envoyée sur l'échantillon, la polarisation de la lumière réfléchie devient elliptique. Le grand axe de la polarisation fait un petit angle  $\theta_K$  par rapport à la polarisation sans

rotation, appelé l'angle de rotation Kerr (Fig. II.13). L'ellipticité de la polarisation  $\varepsilon_K$  est le rapport du petit axe sur le grand axe. L'angle de rotation Kerr  $\theta_K$ , l'ellipticité  $\varepsilon_K$  et l'intensité de la lumière réfléchie sont les trois grandeurs qu'on peut mesurer et relier aux caractéristiques magnétiques du matériau sondé.

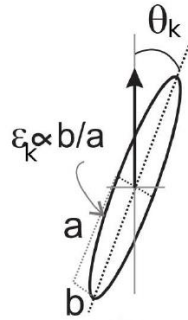


Figure II.13. Définition de l'angle de rotation Kerr  $\theta_K$  et de l'ellipticité  $\varepsilon_K$  de la lumière réfléchie sur un matériau ferromagnétique par rapport à la polarisation linéaire (flèche verticale) de la lumière réfléchie sans rotation.

Le plan d'incidence d'une réflexion contient par définition le faisceau incident et la normale à l'échantillon (axe z). Les composantes de l'aimantation sondées par une mesure Kerr sont généralement spécifiées en composante polaire perpendiculaire à l'échantillon ( $M_z$ ), composante longitudinale dans le plan d'incidence ( $M_y$ ) et composante transverse perpendiculaire au plan d'incidence ( $M_x$ ) (Fig.II.14). Quand la lumière incidente est dirigée suivant la normale de l'échantillon, seule la composante polaire est mesurée par l'angle Kerr  $\theta_K$  ou l'ellipticité  $\varepsilon_K$ . Les deux autres composantes de l'aimantation n'ont pas d'effet sur la polarisation de la lumière réfléchie dans ce cas-là. Avec un angle d'incidence pour la lumière (Fig.II.14 polaire), les composantes polaire et longitudinale de l'aimantation affectent la polarisation de la lumière réfléchie et la composante transverse n'a pas d'effet. Pour une couche mince, l'aimantation reste le plus souvent dans le plan du film. Ainsi, avec un champ appliqué par les électro-aimants suivant la direction longitudinale, l'aimantation d'une couche mince varie et se renverse dans le plan du film au cours d'un cycle d'hystérèse, c'est-à-dire que les composantes longitudinales et transverse évoluent. La configuration de la mesure Kerr (Fig.II.14 longitudinal) permet d'extraire la composante longitudinale de l'aimantation. Cependant, la composante transverse n'a pas d'effet sur la polarisation de la lumière réfléchie. La manière d'extraire la composante transverse est de mesurer l'intensité de la lumière réfléchie (Fig.II.14 transversal).

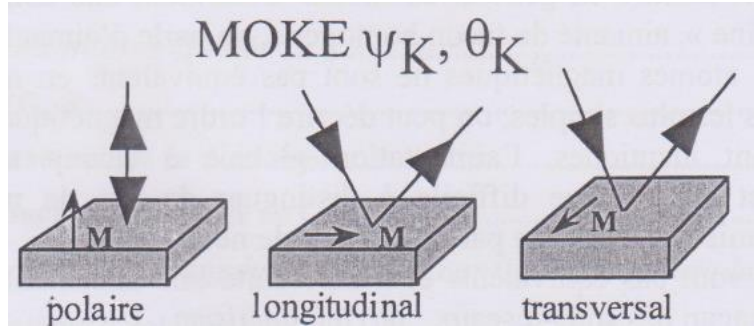


Figure II.14. Différentes configurations de MOKE

### II.6.2 Microscopie Kerr

La microscopie basée sur l'effet Kerr permet de visualiser les domaines magnétiques et leurs propagations (Fig. II.15). La lumière d'une diode électroluminescente est d'abord polarisée par un polariseur. Elle passe ensuite par un cube semi réfléchissant (beam splitter) qui envoie la majeure partie de la lumière vers l'échantillon. L'échantillon joue le rôle d'un miroir. Les régions aimantées up ou down font tourner la polarisation de la lumière réfléchie d'un angle proportionnellement à la valeur de l'aimantation. En mesurant la polarisation de la lumière réfléchie par un analyseur en position croisée par rapport au polariseur, les régions aimantées up ou down sont ainsi imagées. On remarque que la configuration de ce microscope sonde la composante polaire de l'aimantation (Fig.II.15).

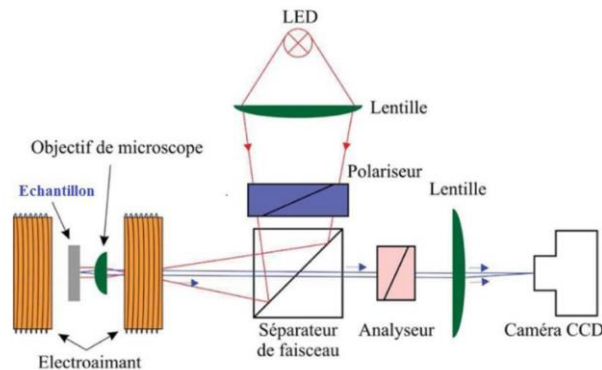


Figure II.15. Schéma du microscope à effet magnéto-optique Kerr.

Le champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'échantillon par les électro-aimants permet de créer et de manipuler les domaines magnétiques. En pratique, une première impulsion forte du champ magnétique et de longue durée permet de saturer l'aimantation de l'échantillon. Ensuite, une impulsion très courte avec un champ inverse génère un petit domaine magnétique. Des impulsions supplémentaires du champ font déplacer les parois de domaines. En analysant toute la

séquence des images obtenues et en connaissant la fréquence et la durée des impulsions, on en déduit la distance parcourue par la paroi et sa vitesse de déplacement.

### II.6.3 Magnétométrie Kerr résolue en temps (Tr-MOKE)

Le système Kerr magnéto-optique à résolution temporelle (Tr-MOKE) permet de détecter la dynamique de l'aimantation avec de bonnes résolutions temporelles (sub-picosecondes) et spatiales (point de faisceau limité par diffraction). Le mode pompe – sonde est utilisé, en variant le délai du faisceau sonde par rapport au faisceau pompe. Le principe est d'utiliser un faisceau laser pour chauffer rapidement l'échantillon afin de modifier localement son aimantation, voire la renverser dans certains cas, et de mesurer en temps réel la variation de l'aimantation par effet Kerr. En mesurant la précession de l'aimantation au cours du temps jusqu'au retour à l'état d'équilibre (Fig.II.16), nous pouvons extraire la fréquence de la précession et son amortissement, ce en fonction du champ magnétique appliqué [Iihama2014, Mizukami2015, Lattery2018, Huang2021].

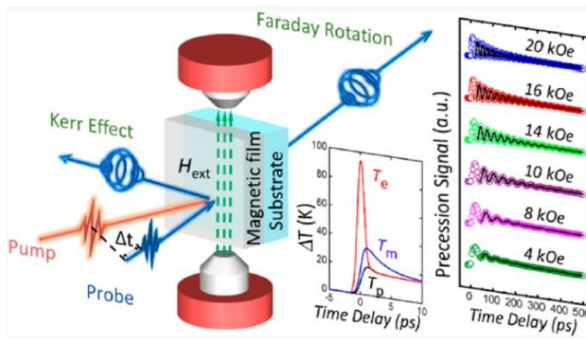


Figure II.16. Schéma de principe du mode pompe-sonde de mesures résolues en temps de la dynamique de l'aimantation par effet magnéto-optique Kerr (en réflexion) ou Faraday (en transmission) [Huang2021].

### II.6.4 Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM)

Le magnétomètre à échantillons vibrants (VSM) (Fig.II.17) permet de mesurer directement l'aimantation d'un échantillon en fonction du champ appliqué. Un échantillon magnétique est placé sur une canne porte-échantillon mise en vibration à une fréquence typiquement de 10 Hz. Le courant induit dans les bobines de mesure par la variation de flux due à cette vibration permet de remonter à la valeur du moment magnétique de l'échantillon. La détection synchrone à la fréquence de vibration permet d'éliminer du bruit ambiant et d'extraire le signal de l'échantillon. Les mesures sont très sensibles pour atteindre des valeurs du moment magnétique de l'ordre de  $10^{-5}$  EMU et rapides (de l'ordre de 10 s par point). L'avantage de cet appareil est sa souplesse avec un champ magnétique pouvant être appliqué suivant toutes les directions de l'échantillon jusqu'à 3 Tesla. Il est alors possible de remonter aux valeurs du champ coercitif, du champ d'anisotropie et de l'aimantation volumique de la couche mince. Cependant, la mesure ici est globale contrairement à

MOKE et contient une contribution diamagnétique ou paramagnétique selon les cas du substrat et du porte-échantillon. Il convient de soustraire la pente en fonction du champ due au substrat et au porte-échantillon, pour obtenir le cycle d'hystérèse de la couche mince.

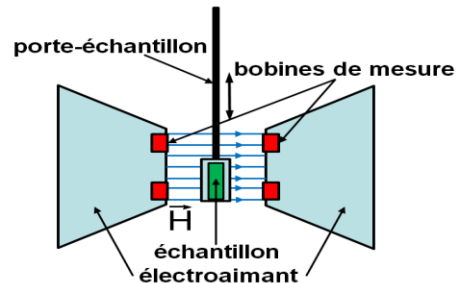


Figure II.17. Schéma de fonctionnement d'un VSM.

### III. Développements expérimentaux

Dans ce chapitre, je décris mes principales réalisations expérimentales. Il s'agit de la pulvérisation cathodique pour la croissance de couches minces, le traitement post-croissance par irradiation ionique et la caractérisation des propriétés magnétiques par effet magnéto-optique Kerr.

#### III.1 Développements expérimentaux de la pulvérisation cathodique

La technologie moderne requière de nouveaux matériaux et des nanostructures innovantes avec des couches ultraminces de matériaux d'une grande pureté. Il est nécessaire de développer des systèmes d'évaporation sous vide et sous ultra vide pour pouvoir déposer du matériau monocouche atomique par monocouche atomique et pour éviter toute pollution. La croissance de couches minces par pulvérisation cathodique répond à ces exigences.

### III.1.1 Système de dépôt à l'Institut d'Electronique Fondamentale (Orsay)

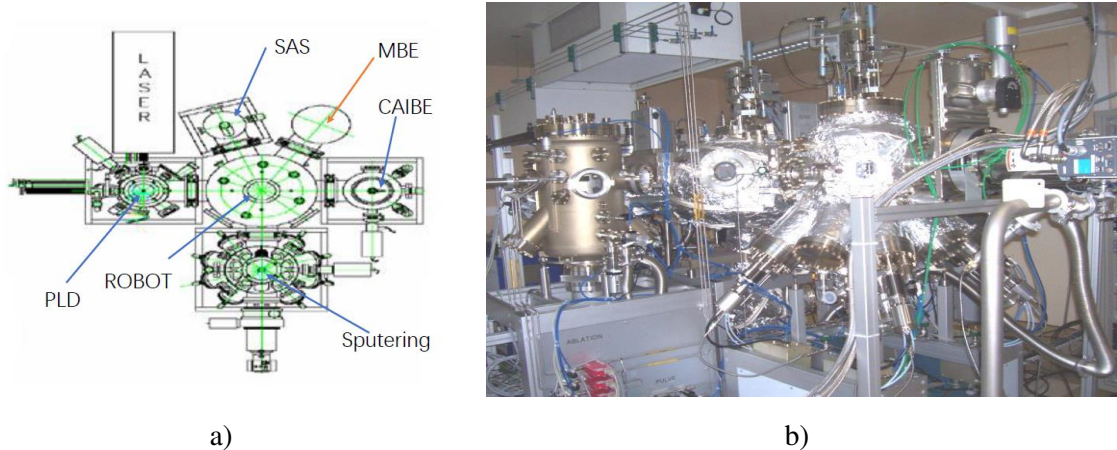


Figure III.1. Système de dépôt à l'IEF. a) Schéma de principe. b) Photo du montage expérimental.

J'ai commencé en 2006 à élaborer des multicouches Co/Pt par pulvérisation cathodique à l'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF, Orsay) dans un grand système de dépôts (Fig.III.1). En plus de la pulvérisation cathodique magnétron, le système comprend également l'épitaxie par jets moléculaires (MBE), le dépôt par ablation laser pulsé (PLD) et la gravure par faisceaux d'ions assistée par gaz réactif (CAIBE, *chemically assisted ion beam etching*). Je vais décrire ici uniquement la partie pulvérisation cathodique magnétron, car j'ai le plus travaillé sur cette partie et contribué à son montage et à son fonctionnement.

Le dispositif pulvérisation possède son sas individuel de chargement. Il est composé d'une chambre de 600 mm de diamètre. Le porte-échantillon installée sur la partie supérieure peut accueillir des échantillons de grandes tailles jusqu'à 200 mm de diamètre. L'échantillon peut être chauffé jusqu'à 650°C. De plus, une rotation de l'échantillon modulable jusqu'à 80 tours par minute permet d'homogénéiser la croissance sur toute la surface du substrat. Le système de pompage dans la partie inférieure de l'enceinte est composé d'une pompe primaire, une pompe turbomoléculaire et une vanne UHV réglable en ouverture pour modifier la vitesse de pompage. La pompe cryogénique à hélium liquide se trouve sur le plan médian de l'enceinte, avec sa vanne réglable en ouverture. Ces deux systèmes de pompage combinés nous permettent d'atteindre un vide de  $10^{-9}$  mbar.

Dans la partie inférieure se trouvent 9 cathodes magnétrons orientées à 45 degrés par rapport à l'axe vertical de l'échantillon. Elles peuvent fonctionner en courant DC ou RF (13,56 GHz) jusqu'à une puissance de 300 W. Il est possible d'effectuer la codéposition avec 6 cathodes, ce qui offre la possibilité de combiner une grande variété de matériaux.

### III.1.2 Système d'élaboration de matériaux développé à Hefei (Chine)

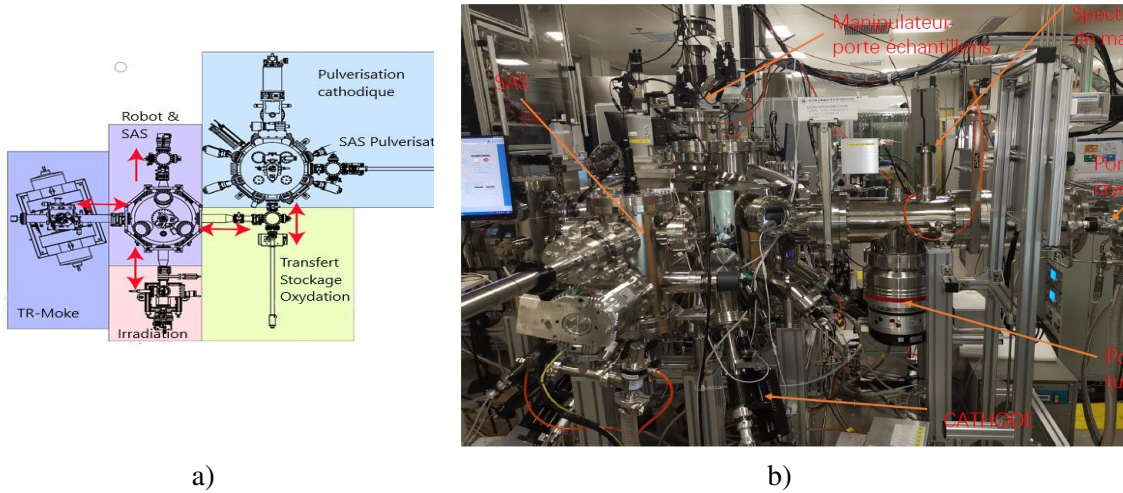


Figure III.2. Système d'élaboration, de traitement et de caractérisation de matériaux à Hefei (Chine). a) Schéma de principe. b) Photo du montage expérimental.

Suite à la réalisation d'un premier système à l'Université Beihang (Beijing, Chine), j'ai dirigé la réalisation d'un système de dépôts, de traitement et de caractérisation au Centre des Nanosciences et Nanotechnologies (NSTC) à Hefei (Chine). Le système comprend la croissance par pulvérisation cathodique magnétron, le traitement par irradiation ionique et la caractérisation par MOKE (Fig.III.2). Avec deux sas d'introduction et un module d'oxydation, il est possible de transférer l'échantillon dans les différentes chambres sans remise à l'air, ce qui permet de préserver l'échantillon dans un très bon vide de  $10^{-9}$  mbar.

J'y ai installé un manipulateur porte-échantillons chauffant ( $850^{\circ}\text{C}$ ), 12 cathodes de 2 pouces, une balance à quartz pour mesurer les épaisseurs de dépôt en temps réel, un spectromètre de masse pour analyser les gaz résiduels et détection de fuites, un système de pompage et de mesure du vide et une chambre de chargement (sas). On peut détailler les éléments essentiels du système.

- Manipulateur porte-échantillons.

Le manipulateur porte-échantillons est situé dans la partie supérieure. Il est muni de trois translations (X, Y et Z) et d'une rotation autour de l'axe vertical Z. Il est équipé d'un four pouvant atteindre  $850^{\circ}\text{C}$  effectifs sur l'échantillon ( $1000^{\circ}\text{C}$  mesuré sur le four). Il peut accueillir un porte échantillons de  $30 \times 30$  mm sur lequel on peut fixer des échantillons de taille  $20 \times 20$  mm maximum. Un cache principal permet d'empêcher le dépôt durant la mise au point du plasma.

- Cathodes magnétrons.

Les cathodes magnétrons (Fig.III.3) installées sont adaptées pour des cibles de 2 pouces. Elles ont été développées par la société Thin Film Consulting (Allemagne) selon un design que nous avons défini. Elles ont la possibilité de translater sur une distance de 200 mm suivant l'axe de la cathode et peuvent être inclinées de 45 degrés par rapport à l'axe. Elles possèdent une entrée de gaz proche de la cible, une cheminée pour confiner ce gaz et permettre l'amorçage du plasma à un vide de l'ordre de  $10^{-4}$  mbar. Enfin, un dispositif de cache est présent pour empêcher le dépôt durant le réglage du plasma.



Figure III.3. Cathode magnétron conçue avec translation et inclinaison.

- Balance à quartz.

Les microbalances à quartz sont utilisées pour mesurer, in situ et en temps réel, l'épaisseur des couches minces déposées sous vide. La mesure est basée sur la modification de la fréquence d'oscillations d'un cristal quartz piézoélectrique, provoquée par une surcharge en masse. En effet, la fréquence de résonance du résonateur de quartz varie de façon proportionnelle à la masse de la couche déposée. On utilise des quartz monocristallins avec une fréquence de 6 MHz. La balance est installée au plus près du substrat sur lequel se fait le dépôt. En connaissant la densité de la couche déposée, l'épaisseur de la couche est calculée en temps réel. La relation entre la quantité de matière déposée sur la balance et celle effectivement sur le substrat est étalonnée par des mesures d'épaisseur des couches par AFM et par réflectivité des rayons X.

- Spectromètre de masse.

Le spectromètre mesure le rapport entre la charge d'un ion et sa masse, ce qui permet de déterminer la nature et la quantité de gaz résiduelle dans l'enceinte. Sa sensibilité chimique permet la détection de fuite de l'enceinte, par exemple par détection de l'hélium qu'on injecte sur une partie à examiner de l'enceinte.

- Système de pompage et mesure du vide.



Le pompage de l'ensemble est assuré par un système composé d'une pompe cryogénique, d'une pompe turbo moléculaire avec sa pompe primaire et un sublimateur de titane. La mesure du vide se fait par plusieurs jauges, dédiées pour les différentes parties du vide : une jauge Barathon, une jauge Penning, une jauge ionique (dite Bayer Alpert) et une jauge full range. Le vide limite atteint est de  $5.10^{-11}$  mbar après étuvage et de  $5.10^{-10}$  mbar en fonctionnement quotidien.

- Sas.

Sur la chambre de la pulvérisation est couplé un sas nous permettant de charger directement les échantillons sans passer par le robot et son sas. Il peut contenir 12 échantillons. Le vide de base de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-8}$  mbar est assuré par un système de pompage turbomoléculaire.

- Logiciel de pilotage.

Le logiciel de contrôle et de pilotage a été développé par une start-up (TREC) que nous avons créée, afin de commercialiser notre système de dépôt et de caractérisation.

## **III.2 Développements expérimentaux du système d'irradiation par ions $\text{He}^+$**

### III.2.1 Mise en œuvre du faisceau d'ions à l'IEF (Orsay)

J'ai participé au développement à l'IEF d'un prototype de système d'irradiation ionique, piloté par Cyril Beigne (IEF) en collaboration avec le laboratoire CSNSM (Saclay) dans le cadre du projet NANORAD. J'ai monté et optimisé le système à l'IEF.

La mise en œuvre d'un faisceau d'ions nécessite une source d'ions ainsi qu'une succession de tubes sous vide afin de traiter et diriger les ions créés. Le filament, par chauffage, émet des électrons qui ionisent le gaz introduit dans la source. Un champ magnétique créé par un solénoïde modifie la trajectoire des électrons en spirale et augmente l'efficacité d'ionisation du gaz. Le système réalisé est illustré en figure III.4. Le faisceau d'ions est extrait de la source, accéléré sous une tension et ensuite focalisé. Un élément de courbure magnétique permet de sélectionner les ions d'énergie désirée. Ils sont ensuite accélérés par une tension pour atteindre leur énergie caractéristique de travail. Afin de diriger précisément les ions sur l'échantillon et d'éliminer les neutres et les ions restants, on utilise des plaques de déflexion soumises à une tension.

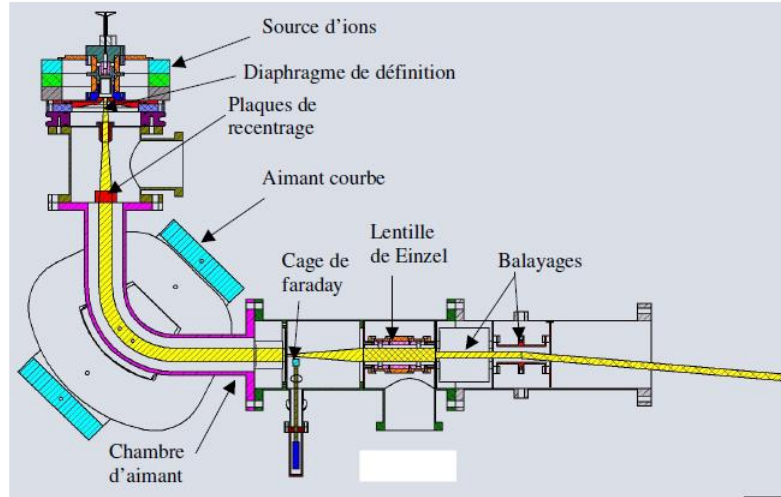


Figure III.4. Schéma en coupe du système d'irradiation à l'IEF

Je détaille ci-dessous plus en détails les éléments du système. La source utilisée est une source d'ions  $\text{He}^+$  de basse énergie 5-20keV, de type Penning (cathode froide). Les courants mis en jeu sont relativement faibles, inférieurs à quelques dizaines de  $\mu\text{A}$ , ce qui permet des doses d'irradiation de l'ordre de  $2 \times 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup> en des temps très raisonnables (une dizaine de minutes). Ce type de source a une dispersion en énergie assez grande de  $\sim 100$  eV, d'où la nécessité de faire ensuite un effort sur l'optique et la taille finale de la zone irradiée. L'aimant courbe (0,4 Tesla) assure le tri en masse des ions et impose une déflexion de 90°, ce qui a pour but d'éliminer les ions lourds et les neutres présents dans le faisceau. A la sortie de la source d'ions, le vide est assuré par une pompe turbomoléculaire. A la sortie de l'aimant, une fente de définition qui dimensionne le faisceau à 1.5mm. Une lentille de Einzel (succession tube à la masse et polarisé à 12 kV) assure la bonne focalisation du faisceau au niveau des plaques de déflexion et de balayage. Une autre pompe turbomoléculaire maintient une pression de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar. Un double diaphragme permet de contrôler la dose d'irradiation reçue par l'échantillon. La zone balayée par le faisceau est de 4 cm<sup>2</sup> au niveau de l'échantillon dans une chambre sous ultra vide.

Pour améliorer l'efficacité d'irradiation, j'ai apporté plusieurs modifications au système. La source Penning à cathode froide a été remplacée plus tard par une source à résonance de cyclotron d'électrons (ECR – Monogan, Pantechnick), ce qui augmente le taux d'ionisation du gaz. Une nouvelle chambre a été installée avec un porte-échantillon permettant de mesurer en temps réel la dose d'irradiation (mesure de courant). Un four de chauffage (600°C) de l'échantillon a été ajouté, avec un écran pour empêcher la perturbation induite par les électrons du système de

chauffage sur les mesures de courant sur l'échantillon. Comme mentionnés dans Chapitre II, la température avec le flux d'ions est un paramètre clé pour l'irradiation ionique.

### III.2.2 Mise en œuvre du système d'irradiation à NSTC (Hefei, Chine)

Le second système d'irradiation que j'ai installé à NSTC à Hefei (Chine) a été développé en relation avec les sociétés Spin-ion technologies (Palaiseau, France) et Dreebit (Dresdes, Allemagne). Le système est composé de trois parties principales correspondant aux trois seuils de potentiel (Fig.III.5), comprenant entre autres une source d'ions ECRIS<sup>®</sup> (Fig.III.5.c repère 6), un système d'extraction par lentille de Einzel (Fig.III.5.c repère 8), un filtre de Wien (Fig.III.5.c repère 9), un système de suppression des particules neutres (Fig. III.5.c repère 10) et enfin une seconde lentille de Einzel pour la focalisation (Fig. III.5.c repère 12), la déflexion et le balayage du faisceau. Les derniers éléments cités sont détaillés ci-après. L'utilisation de trois seuils est originale : le seuil à la masse (1) permet de connecter cet instrument sur n'importe quels autres instruments sans avoir à l'isoler électriquement. Le seuil 2 permet de produire le faisceau d'ions He<sup>+</sup> (avec une tension variant de 3 à 8 kV) et de régler son intensité. Le troisième seuil permet une accélération supplémentaire des ions avec un potentiel de 0 à 22 kV sans modifier l'intensité du faisceau.

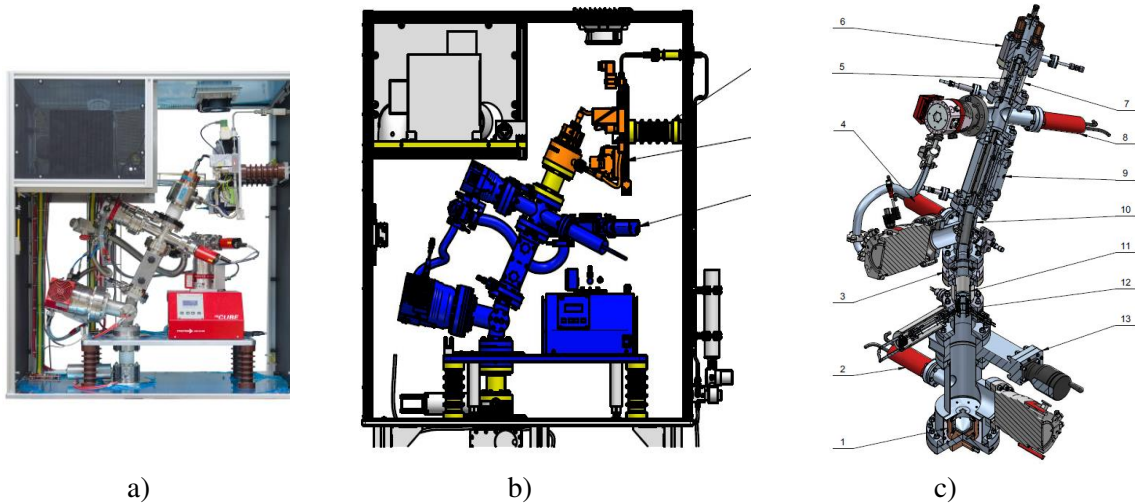


Figure III.5. Système d'irradiation. Photo (a) et schéma (b) du système avec 3 parties aux seuils de potentiel différents : (1) la masse, (3) 0 à 22 kV (partie en bleu) et (2) 22 à 30 kV (partie en orange). c) Schéma des parties du guidage du faisceau.

- Source d'ions ECRIS.

L'ECRIS<sup>®</sup> est une source d'ions ECR pour la production d'ions faiblement chargés. Le principe de fonctionnement est basé sur l'ionisation d'atomes par électrons du plasma ECR. La

source est entourée de deux paires d'aimants permanents, de telle sorte qu'un champ magnétique est induit au centre du bas de la source. Cette configuration fournit un axe de confinement du plasma qui permet l'ionisation continue des atomes neutres d'hélium introduits dans la source (Fig.III.6). Une source micro-ondes de 2,45 GHz est utilisée pour la création d'un plasma. Les électrons tournent le long des lignes de champ magnétique dans le volume de la source et crée un transfert d'énergie résonnant si la fréquence de giration est égale à la fréquence micro-ondes. Cette résonance cyclotronique électronique permet un taux d'ionisation élevé et donc la création de courants ioniques relativement élevés.

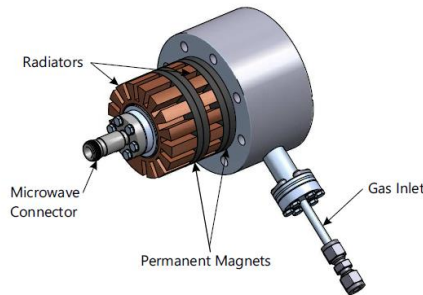


Figure III.6. Source d'ions ECRIS<sup>®</sup> avec aimants spécifiques intégrés pour le confinement du plasma utilisant le gaz Hélium.

- Système d'extraction par lentilles de Einzel.

Pour une extraction efficace des ions à partir de l'ECRIS, la ligne du faisceau après la source comprend un assemblage d'électrodes optimisé à cet effet. L'ensemble d'extraction comprend une lentille extractrice ainsi qu'une lentille de Einzel pour améliorer la forme du faisceau d'ions.

- Filtre de Wien.

De nombreuses applications dans la science des matériaux ainsi que dans l'industrie exigent un faisceau d'ions de masse et de charge bien définies. Une solution compacte et simple pour cette exigence est l'utilisation d'un filtre Wien (Fig.III.7). Son principe fonctionnel est basé sur la séparation des vitesses des particules et ions avec des champs magnétiques et électriques croisés. Ainsi, il sépare les ions en fonction de leurs masses et charges et laisse passer uniquement les ions d'énergie et de charge désirées. Les ions d'énergie, de masse et de charge différentes sont éliminés, ainsi que les isotopes et les particules, molécules et amas de chargés multiples.

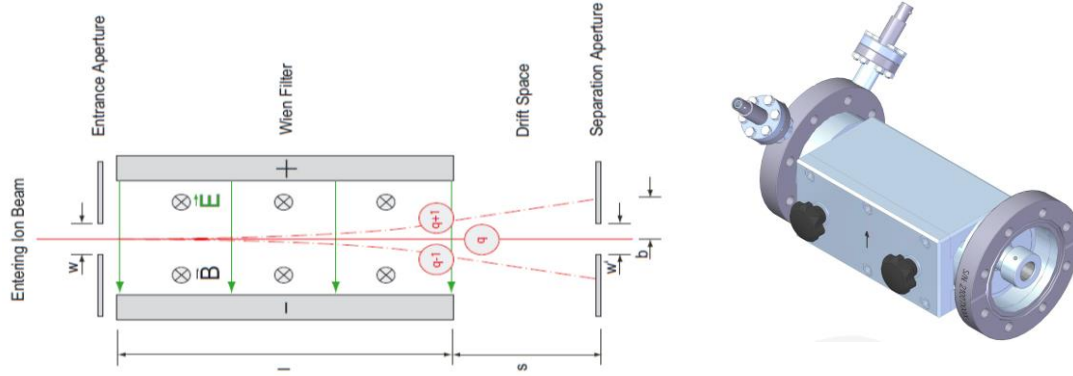


Figure III.7. Principe de fonctionnement et image du filtre de Wien

- Neutralisation des particules neutres.

Le neutraliseur de particules neutres se compose d'un déflecteur électrostatique à deux segments, permettant de dévier un faisceau d'ions d'énergie jusqu'à 8 keV dans le sens horizontal avec un angle de 25°. Les particules neutres n'étant pas déviées sont éliminées sur les surfaces des électrodes qui sont montés sur des matériaux isolants conducteurs thermiquement.

- Chambre d'irradiation.

La chambre d'irradiation est isolée de l'ensemble par des vannes UHV. Elle a un vide de base de  $10^{-9}$  mbar et contient un manipulateur porte-échantillons avec rotation et avec un système de chauffage jusqu'à 650 °C. Sur un cache sont installés des capteurs pour régler et optimiser le flux d'ions et également pour régler le balayage du faisceau.

### III.2.3 Simulation du faisceau d'ions

Des calculs et simulations poussés ont été réalisés avec la Société « Accelerators and Cryogenic Systems » (ACS, Orsay, France) afin de visualiser et de modéliser la dispersion du faisceau et sa contamination possible dans notre équipement d'irradiation. Le code TraceWin utilisé a été développé par le CEA et est capable de mener des calculs linéaires ou non-linéaires en 2D ou 3D de faisceaux d'ions ou d'électrons, en prenant en compte les éléments du trajet (amplitudes de champs magnétiques et électriques, longueurs, phases pour des cavités) afin d'obtenir des paramètres clés (taille, twiss et phase du faisceau) à différentes positions du trajet. Les causes d'élargissement et d'écarts du faisceau d'ions sont multiples et peuvent concerner des décalages en positions, énergie et fluence à l'entrée du faisceau et des éléments de la ligne (dipôles, quadropôles, rotation, gradient de champ). Les conséquences de ces erreurs sur les réglages, les pertes et les caractéristiques du faisceau le long de la ligne doivent être évalués. Avec le code employé, deux

types d'erreurs, statiques et dynamiques, peuvent être pris en compte. Les erreurs statiques peuvent être détectées et corrigées. Par exemple, les positions du faisceau sont mesurées avec des détecteurs de profils et corrigées avec des guides afin de compenser les désalignements du faisceau. Les erreurs dynamiques ne peuvent pas être corrigées, mais il faut les estimer. Elles sont causées par des bruits, des vibrations et autres instabilités de faibles amplitudes.

Tableau III.1. Tolérances sur les variations du faisceau émis par la source.

| Tolérances  | Statique                          | Dynamique                         |
|---|-----------------------------------|-----------------------------------|
| Déplacement $\delta x, \delta y$ (mm)   | $\pm 0,5$                         | $\pm 0,05$                        |
| Déplacement $\delta x', \delta y'$ (mrad)   | $\pm 2$                           | $\pm 0,2$                         |
| Angle longitudinal $\delta\phi$ ( $^\circ$ ) et variation d'énergie $\delta E$ (eV) | $\pm 0,02^\circ, \pm 10\text{eV}$ | $\pm 0,002^\circ, \pm 1\text{eV}$ |
| Variations d'émittance transverse et longitudinal (%)                               | $\pm 5, \pm 0.001$                | $\pm 0,5, \pm 0,0001$             |
| Désaccord de phases longitudinales (%)  | $\pm 0,0001$                      | $\pm 0,00001$                     |
| Courant (nA)  | $\pm 0,001$                       | $\pm 0,0001$                      |
| Paramètres de Twiss $\alpha_{x,y}$  | $\pm 1$                           | $\pm 0,1$                         |
| Paramètres de Twiss $\beta_{x,y}$   | [0,05 ; 1]                        | [0,005 ; 0,1]                     |

Pour chaque itération d'un calcul, on échantillonne de façon aléatoire des valeurs du faisceau dans l'intervalle compris entre les valeurs maximales considérées de notre dispositif (Tableau III.1). Le résultat issu de 2000 échantillonnages aléatoires est présenté en figure III.8, pour un faisceau de  $\text{He}^+$  d'intensité  $110 \mu\text{A}$  en sortie de source avec une tension moyenne de 15 kV. Nous pouvons constater que la stabilité du faisceau est excellente ( $< 0.02\text{mm}$ ) et la fluctuation autour du centroïde reste inférieure à 1 mm. L'acceptance de la ligne est bien optimisée, de sorte que les niveaux  $10^{-4}$  des cartes de densités de particules pouvant être considérée comme une limite basse réaliste du halo de faisceau de faisceau. De même, au bout de la ligne, les paramètres du halo du faisceau ne sont pas modifiés par rapport au faisceau nominal.

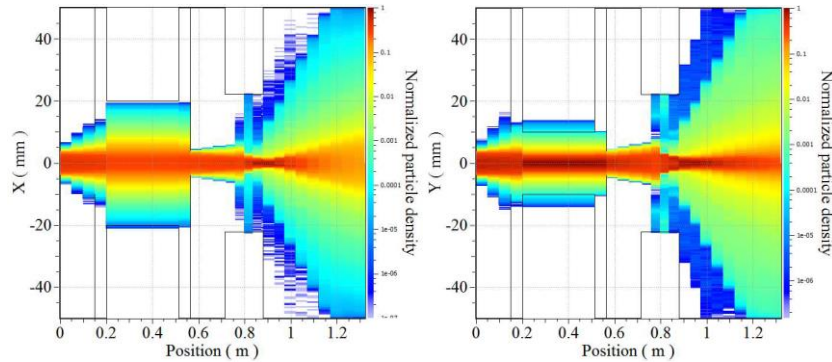


Figure III.8. Densités de particules normalisées dans le plan horizontal (gauche) et dans le plan vertical (droite) avec 2000 échantillonnages aléatoires.

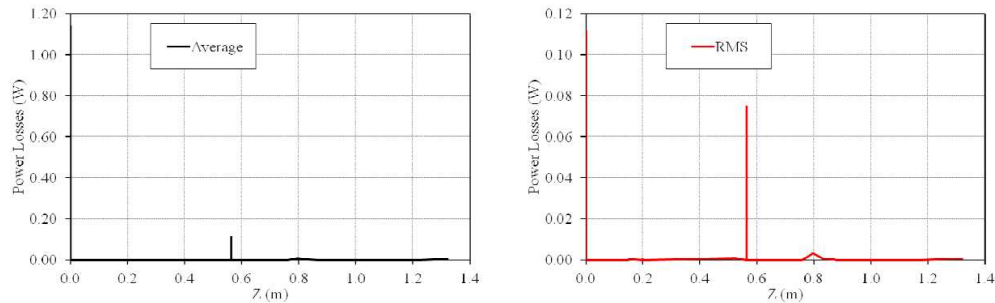


Figure III.9. Moyenne (gauche) et écart-type (RMS) (droite) de la puissance perdue le long du trajet, issus de 2000 échantillonnages aléatoires.

La perte en termes de puissance du faisceau le long du trajet est également évaluée et analysée pour obtenir un faisceau de la meilleure qualité possible. La puissance initiale du faisceau est de 1.65 W (15kV et 0.11 mA). La moyenne et l'écart-type (RMS) de la perte en puissance du faisceau sont examinés le long du trajet (Fig.III.9). Nous constatons que 1.2 W du faisceau est perdu dès le trou d'extraction à la sortie de la source (position 0,6 m). Les pertes avals sont alors bien plus réduites et en particulier dans le diaphragme de 4 mm que nous avons positionné entre le dipôle et la lentille de Einzel (position 0,8m). Hors balayage, nous pouvons également déterminer la stabilité du faisceau au bout de la ligne ainsi que sa taille en ce même point. Nous observons que le faisceau est en moyenne bien centré avec une précision de 0.6 mm. De même, la divergence RMS du faisceau est en moyenne de 15.3 et 19 mrad ( $\sim 1^\circ$ ) avec une précision RMS sur cette taille de divergence de l'ordre de 2 mrad, ce qui est très satisfaisant. En résumé, les calculs sur la stabilité et la perte de puissance du faisceau nous permettent d'assurer une bonne qualité du faisceau de la source jusqu'à la sortie avec les paramètres de fonctionnement utilisés, afin d'avoir des conditions d'irradiation optimales pour le traitement des échantillons.

### III.3 Développement expérimental du système LP-MOKE

Notre système d'effet magnéto-optique Kerr a été développé pour caractériser des matériaux ferromagnétiques, des matériaux bidimensionnels et des dispositifs spintroniques. Le

champ magnétique peut être appliqué dans le plan et hors plan simultanément. On obtient ainsi les cycles d'hystérèse hors plan et dans le plan en même temps, ce qui est extrêmement utile pour suivre et comprendre précisément l'évolution 3D de l'aimantation d'un échantillon.

Le système est composé de trois parties, partie aimants, partie lumière et partie échantillon et capteurs magnétiques. La partie 'aimants' est composée de 4 pôles en croix (Fig.III.10). Les pôles sont interchangeable avec 3 tailles différentes, afin d'optimiser et d'adapter la gamme du champ magnétique appliqué à l'échantillon. La partie lumière comprend les lasers, les optiques et les détecteurs. La partie échantillon intègre des capteurs magnétiques dans le porte-échantillon au plus près de l'échantillon, afin de mesurer le plus précisément les valeurs du champ magnétique effectivement appliqués à l'échantillon.

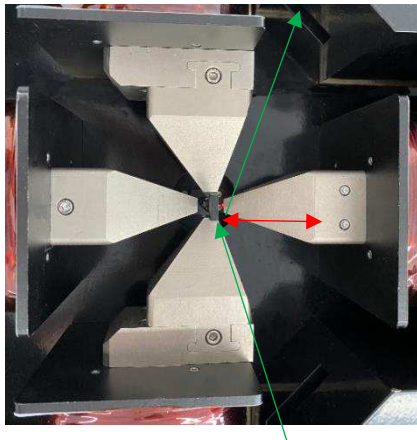


Figure III.10. Vue dessus du cœur du système LP-MOKE. Les 4 pôles d'électroaimants sont en croix au centre laquelle se trouve l'échantillon. Les flèches rouges indiquent les trajets du faisceau laser en configuration perpendiculaire et en vert en configuration planaire.

Le module de détection du signal Kerr a une sensibilité élevée, une grande stabilité et un faible bruit. La précision angulaire est de l'ordre de 0,2 mdeg pour la mesure des angles de rotation Kerr polaire et longitudinal. Le champ magnétique maximal dans le plan sous l'écart de pôles standard (16 mm) est de 0,5 T, de même pour le champ magnétique vertical maximal. Sous un espacement étroit des pôles (7 mm), les champs magnétiques dans le plan et hors plan peuvent atteindre 1 T. La précision de la mesure est de 0,05 mT. Le logiciel de pilote comporte également un système de réglage automatique du faisceau laser et de sa réflexion.

### III.4 Développement expérimental du microscope optique Kerr

Le microscope Kerr développé est à haute résolution, avec une station de sonde multifonctionnelle flexible. Les structures et la dynamique de domaines magnétiques dans les



échantillons peuvent être imagées dans diverses conditions : champ magnétique dans le plan, champ magnétique hors plan, courant DC / RF. Un système de contrôle et un logiciel intelligent ont été conçus pour permettre d'appliquer les conditions décrites ci-dessus de façon simultanée, avec une logique de synchronisation définie par l'utilisateur. Les images Kerr sont acquises et traitées automatiquement en temps réel (par exemple, soustraction du bruit de fond, correction de la dérive, etc.). Ce système facilite les mesures et les tests de dispositifs spintroniques.

Le microscope Kerr permet d'imager la composante de l'aimantation dans le plan ou hors plan, avec la configuration longitudinale ou la configuration polaire. La résolution spatiale est 450 nm avec les sondes DC/RF et de 230 nm avec l'objectif immergé dans l'huile (non compatible avec les sondes). Le champ de vision est de 150 ou 750  $\mu\text{m}$ , dépendant de l'objectif utilisé. La vitesse d'acquisition peut atteindre jusqu'à 50 images par seconde. Les régimes longitudinal et polaire peuvent être commuté automatiquement par le logiciel de contrôle.

Une station de sonde magnétique a été conçue et intégrée au microscope Kerr, avec deux paires de sondes DC/RF (0-40 GHz) compatibles avec l'objectif (grossissement 100X) longue distance de travail. Le champ magnétique dans le plan, le champ hors plan et le courant de signal DC/RF peuvent être appliqués simultanément, facilitant l'observation de la dynamique magnétique dans diverses conditions. Dans la configuration standard, le champ dans le plan atteint jusqu'à 0,7 T en 50 ms et celui hors plan jusqu'à 0,2 T. Le dernier peut être augmenté jusqu'à 0,3 T avec un pôle étendu.

Le système de contrôle et le logiciel de visualisation et de traitement facilitent grandement les mesures. La forme d'onde, l'amplitude, la fréquence et le retard relatif du courant/champ peuvent être définis par l'utilisateur. Une clé est installée pour basculer le champ dans le plan ou perpendiculaire. Le courant et la caméra peuvent être synchronisés avec une précision de la microseconde. Le logiciel que nous avons développé permet d'éliminer en temps réel du bruit de fond, et de corriger automatiquement les vibrations et les dérive, etc. La boucle d'hystérésis en fonction du champ magnétique / courant par l'analyse du signal d'image Kerr locale ou globale peut être affichée en temps réel ou sur une moyenne d'itérations souhaitées par l'opérateur.

#### IV. Croissance, structure et magnétisme du système Pt/Co

Dans les chapitres précédents, j'ai introduit des éléments de bases du magnétisme utiles à la compréhension de ma recherche, ainsi que les techniques et outils que j'ai développés ou utilisés.

Ci-dessous, je décrirai l'essentiel de mes travaux sur le système Pt/Co. Les enjeux actuels sont de développer des systèmes électroniques de plus en plus petits, puissants et consommant très peu d'énergie. Nous arrivons donc dans un domaine où la technologie devient de plus en plus complexe et pointue. Mon objectif a été de développer une « brique » de base composée de Pt/Co pouvant servir à de multiples dispositifs complexes (vanne de spin, jonction tunnel ...), ce sur des substrats et supports variés.

Le but premier est d'obtenir l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) dans une couche ultramince de Pt/Co qui est particulièrement intéressante pour les applications. Le défi est de préserver la PMA de la couche mince sur divers substrats et supports et de pouvoir moduler le champ coercitif ( $H_c$ ). Les couches minces devraient contenir le moins de défauts possible, afin d'avoir une propagation de parois de domaines magnétiques homogène. La qualité des couches minces est fortement liée aux conditions de dépôt (vitesse de dépôt, vide de base, température et pression de dépôt) [Stillrich2010]. L'optimisation de ces paramètres a été très chronophage. Le traitement par irradiation ionique ajoute un levier de plus pour modifier les couches minces. Enfin, un point particulièrement important a été de montrer que ce système est intégrable aux dispositifs courants.

Dans ce chapitre, je décrirai des couches et de multicouches basées sur l'empilement élémentaire de Pt/Co. Ces couches ont été essentiellement élaborées en Chine et font en partie l'objet d'une publication [Eimer2023]. Après la description de la croissance de ces couches, j'exposerai les résultats sur le contrôle de la PMA et sur la formation et la propagation de domaines magnétiques. Je montrerai comment l'irradiation par ions  $He^+$  modifie et améliore les propriétés structurales et magnétiques des couches minces. Enfin, je conclurai sur ce chapitre.

## IV.1 Croissance de Pt/Co

La première étape avant le dépôt de couche mince est le nettoyage du substrat. Le nettoyage est effectué d'abord aux ultrasons dans une solution alcaline RBS<sup>TM</sup> diluée à 5%, puis dans une solution d'acétone et enfin dans de l'alcool isopropylique à 99%. Le substrat est ensuite séché à l'azote sec et pur (99,9%) et puis fixé sur le porte-échantillon et introduit immédiatement dans le sas. Pour certains échantillons, une phase de nettoyage par plasma d'argon in situ est effectuée. Le substrat est ensuite transféré dans le manipulateur de l'enceinte de la pulvérisation cathodique qui

est sous un vide de base inférieur à  $10^{-9}$  mbar. Le substrat est placé à la position dite de process avec une rotation de l'ordre de 60 tr/min. Une entrée de gaz d'argon est alors faite dans la chambre (30 sccm,  $10^{-2}$  mbar) et un court nettoyage effectué par plasma entre le cache et l'échantillon (25 Watt, 30 secondes).

Les sources nécessaires au dépôt sont positionnées à 20 cm de l'échantillon. Le plasma est déclenché dans chacune des sources à un vide de  $10^{-2}$  mbar et puis maintenu jusqu'au vide de travail de  $1,3 \times 10^{-4}$  mbar (Fig.IV.1). Une phase de nettoyage des cibles (1 min de plasma minimum) est observée, afin de nettoyer la surface de la cible et de stabiliser le plasma. Le dépôt de couches peut enfin commencer et se fait dans l'ordre de l'empilement voulu et en variant la durée de dépôt correspondant à l'épaisseur de la couche désirée, les vitesses de dépôt étant calibrés par mesures AFM et XRD. Les paramètres de croissance de Co, Pt et Ta sont les suivants (Tab.IV.1).

Tableau IV.1. Conditions typiques de dépôt de Co, Pt et Ta par pulvérisation cathodique en mode DC sous  $1,3 \times 10^{-4}$  mbar d'argon à température ambiante.

|    | Vitesse (nm/min.) | Puissance (W) | Tension de décharge (V) |
|----|-------------------|---------------|-------------------------|
| Co | 2                 | 50            | 385                     |
| Pt | 1.7               | 50            | 430                     |
| Ta | 1                 | 50            | 335                     |



Figure IV.1. Cathodes avec leurs plasmas dans l'enceinte de la pulvérisation cathodique.

## IV.2 Système Pt/Co sur substrats rigides

### IV.2.1 Impacts de substrats

Les vannes de spin et de jonctions tunnel impliquent des empilements de couches de type sub/buffer/HML/Sp/SML/Cap, où les éléments constitutifs sont le substrat (sub), une couche tampon (buffer), une couche magnétique dure (HML), une couche séparatrice de découplage (Sp), une couche magnétique douce (SML) et une couche de couverture (Cap). L'idée est d'utiliser les

mêmes matériaux (Co et Pt) pour développer la partie couche magnétique dure et la couche magnétique douce. Dans un premier temps, je vais donc m'intéresser au développement et à l'étude de Pt/Co sur différents substrats.

De nombreux substrats ont été utilisés, ce en fonction de leurs intérêts technologiques. Le substrat Si/SiO<sub>2</sub> est le plus couramment utilisé dans l'industrie des circuits intégrés. Le substrat d'oxyde de magnésium (MgO) est actuellement utilisé dans les films magnétiques, semi-conducteurs, optiques ou supraconducteurs à haute température. Le substrat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est l'un des substrats céramiques les plus populaires en raison de son excellente résistance à la chaleur, de sa haute résistance mécanique, de sa résistance à l'abrasion et de sa faible perte diélectrique. La surface de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> a une très faible rugosité et présente également une faible porosité. Le substrat SrTiO<sub>3</sub> (STO) fournit une bonne correspondance en paramètre cristallins avec la plupart des matériaux ayant une structure pérovskite. C'est un excellent substrat pour épitaxier des oxydes et des supraconducteurs à haute température. L'oxyde de zinc (ZnO) est compatible avec les films de GaN et des matériaux émettant de la lumière ultraviolette et visible. Le substrat monocristal d'aluminate de magnésium (MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) est largement utilisé dans les dispositifs soniques et micro-ondes. Le substrat monocristal MgF<sub>2</sub> est un matériau biréfringent avec une résistance élevée aux chocs mécaniques et thermiques et aux rayonnements. Enfin, le substrat monocristal de Zirconia (YSZ) dopé à l'yttrium est l'un des premiers matériaux utilisés dans les films minces supraconducteurs à haute température.

Des recherches intéressantes visent aussi à adapter sur des substrats souples les systèmes développés pour les nanocapteurs et la nanoélectronique conventionnels. J'ai donc réalisé et étudié l'empilement Pt/Co sur différents substrats (rigides ou souple et cristallins ou non-cristallins).

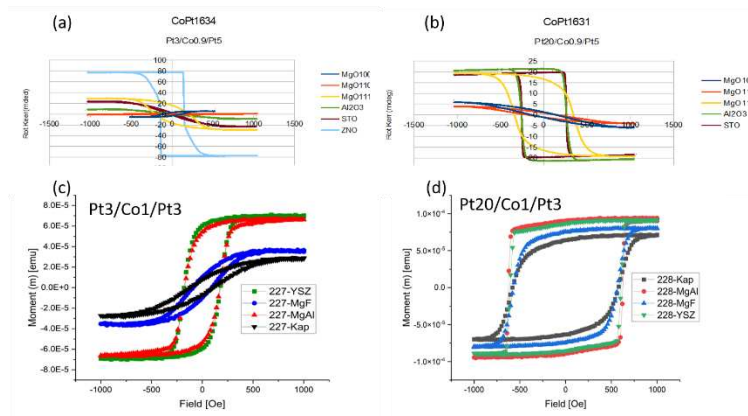


Figure IV.2. Cycles d'hystérésis magnétiques hors plan du système Pt/Co/Pt. (a) Cycles par MOKE polaire des films Pt(3nm) / Co(0,9nm) / Pt(5nm), notés Pt3/Co0.9/Pt5, sur substrats MgO(100), MgO(110), MgO(111), Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(00.1), STO(100), ZnO(00.1). (b) *Ibid* pour les films Pt20/Co0.9/Pt5 où l'épaisseur de la première couche de Pt a été augmentée de 3 à 20 nm. (c) Cycles par VSM des films Pt3/Co1/Pt3 sur substrats YSZ, MgF<sub>2</sub>, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> et Kapton. (d) *Ibid* pour les films Pt20/Co1/Pt où l'épaisseur de la première couche de Pt a été augmentée à 20 nm.

En premier lieu, l'empilement Pt/Co/Pt a été déposé sur différents substrats. En plus, les orientations différentes, (100), (110) et (111), ont été également testées, dans le cas de MgO. La majorité des films n'ont pas de PMA notable, à l'exception du film sur la surface ZnO(00.1) (Fig.IV.2(a)). Pour les films sur MgO, on note cependant que la PMA est un peu plus marquée dans le film sur la surface MgO(111) que dans les films sur les surfaces MgO(100) et MgO(110). Ceci suggère qu'une surface de symétrie ternaire ou hexagonale est favorable pour initier la croissance de Pt et puis de Co. En effet, de nombreuses recherches mentionnent l'importance de l'orientation de la première couche de Pt en (111) pour induire une texture de Co (111) et obtenir la PMA du système Pt/Co/Pt [Huang1998, Wu2001, Xie2006]. Une alternative pour favoriser la texturation de la première couche de Pt en (111) est d'augmenter son épaisseur. En passant de 3 à 20 nm d'épaisseur pour la première couche de Pt, la majorité des films ont recouvert la PMA (Fig.IV.4(b)). On remarque que la surface MgO(111) est toujours plus favorable que les surfaces MgO(100) et (110) pour l'obtention de la PMA des films. La situation est similaire pour les films déposés sur substrats YSZ, MgF<sub>2</sub>, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> et Kapton. De 3 à 20 nm d'épaisseur pour la première couche de Pt, les films ont acquis une plus grande PMA avec un doublement du champ coercitif pour les films sur YSZ et MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> et un triplement pour les films sur MgF<sub>2</sub> et Kapton pour atteindre environ 600 Oe.

#### IV.2.2 Rôle de couche tampon

Nous constatons à ce stade que la PMA n'a pas été obtenue sur tous les types de substrats. Afin de dépasser cette limite et d'obtenir la PMA des films de façon versatile sur la majorité des substrats, je me suis intéressé à une couche tampon pour initier l'empilement Pt/Co. En effet, de nombreux travaux sur le système Pt/Co dans la littérature impliquent une couche tampon. J'ai donc fait croître Pt/Co sur différents substrats avec une couche tampon de Ta et étudié son impact sur la texturation et l'anisotropie magnétique de Pt/Co. Nous avons vu que le substrat a un impact non négligeable sur la PMA d'un film Pt/Co/Pt. En particulier, si le substrat est cristallin, son orientation a un impact sur la première couche de Pt et donc sur la PMA. Des études ont montré que l'orientation (111) de la première couche de Pt est favorable pour la PMA de Pt/Co/Pt [Kisielewski2003, Stillrich2010]. En ajoutant une couche tampon, ici le tantale, nous essayons de

minimiser l'effet du substrat, de favoriser une croissance de Pt(111) et d'obtenir une PMA du film pour la majorité des substrats.

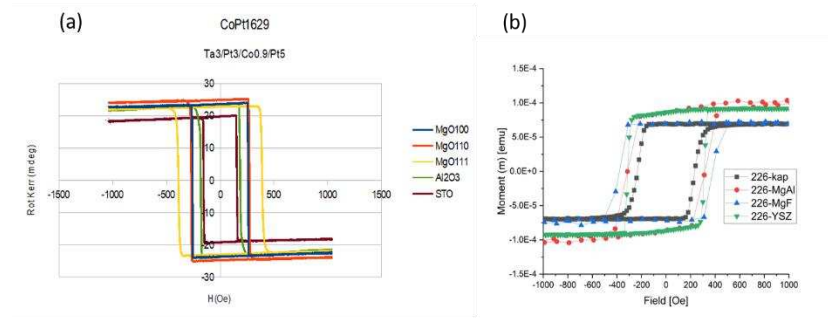


Figure IV.3. Système Pt/Co/Pt avec couche tampon de Ta. (a) Cycles d'hystérésis hors plan mesurés par MOKE des films Ta<sub>3</sub>Pt<sub>3</sub>Co<sub>0.9</sub>Pt<sub>5</sub> sur substrats MgO(100), MgO(110), MgO(111), Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(00.1) et ZnO(00.1). (b) Cycles d'hystérésis hors plan mesurés par VSM des films Ta<sub>3</sub>Pt<sub>3</sub>Co<sub>1</sub>Pt<sub>3</sub> sur substrats Kapton, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, MgF<sub>2</sub> et YSZ.

Les empilements Pt(3nm) / Co(0,9nm) / Pt (5nm) déposés avec une couche tampon de Ta (3nm) ont montré tous une PMA bien marquée (Fig.IV.3(a)) et sont radicalement différents des mêmes empilements déposés sans Ta (Fig.IV.2(a)). Il est à remarquer que la PMA a été obtenue même dans les films sur MgO (100) et (110), alors qu'ils étaient sans PMA malgré l'augmentation de la première couche de Pt précédemment. Cela démontre que la couche tampon de Ta a bien découplé l'effet du substrat et permis une bonne texturation de la première couche de Pt. Des résultats similaires ont été obtenus dans les films sur substrats Kapton, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, MgF<sub>2</sub> et YSZ (Fig.IV.3(b)).

Nous avons vu qu'une bonne PMA a été obtenu dans les films où la couche de Co est déposée sur une première couche de Pt épaisse (20 nm) ou une couche tampon de Ta suivie d'une couche fine de Pt. J'ai exploré plus en détails ces deux pistes. En déposant les empilements Ta(4.5) / Pt (4.5) / Co (1) / Pt (4.5) sur différents substrats, des cycles d'hystérésis hors plan de forme bien rectangulaire ont été obtenus (Fig.IV.4(b-d)). Néanmoins, le champ coercitif change avec le substrat, ce qui reflète l'influence de l'orientation cristalline du substrat et de la rugosité de l'interface substrat / Ta sur la texturation des couches Pt et Co. Pour distinguer le rôle de la couche de Ta et celui de la première couche de Pt dans ces structures, nous avons fait varier l'épaisseur de la couche de Ta en fixant l'épaisseur de la première couche Pt à 4.5 nm. On peut voir qu'avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche Ta, la coercivité des films diminue d'abord et puis augmente et que la tendance des différents substrats est cohérente. Cela indique que l'état de l'interface Pt/Co change en fonction de l'état de l'interface Ta/Pt. Il est probable que la rugosité de surface de Ta demeure élevée pour une couche ultramince de Ta et que cela s'améliore avec

l'épaisseur de Ta, en entraînant une amélioration de l'état de l'interface Pt/Co, de sorte que la coercivité des films augmente [Kim2015, Kaidatzis2015]. Si on maintient la même épaisseur de Ta et varie l'épaisseur de la première couche de Pt, on observe que la coercivité augmente avec l'épaisseur de Pt (Fig.IV.4(f,g)), ce qui est conforme avec l'idée que la texturation de Pt s'améliore avec son épaisseur. Dans le cas des structures sans Ta et avec la première couche de Pt de 4.5 nm, la PMA a été obtenue dans le film sur Si/SiO<sub>2</sub> et elle est faible dans les films sur MgO avec les cycles d'hystérésis arrondis (Fig.IV.4(h)). Lorsque l'épaisseur de Pt est de 20 nm, la PMA est bien meilleure et tous les cycles sont de forme rectangulaire et indiquent l'axe hors plan comme l'axe facile d'aimantation (Fig.IV.4(i)).

On peut résumer les rôles des premières couches de Ta et Pt comme suit. Des couches épaisses de Ta ou de Pt permettent une meilleure texturation de Co et entraînent une PMA marquée. Dans le cas de Pt seul, il faut avoir une épaisseur conséquente de Pt (20 nm) pour y parvenir. L'insertion de Ta comme première couche tampon permet d'accélérer le processus et d'améliorer la cristallinité et la texture du reste. Les résultats sont en conformité avec des travaux sur l'utilisation de Ta comme couche tampon qui améliore le collage de Pt sur des substrats et l'anisotropie magnétique de Co par la suite [Kim2015, Kaidatzis2015].

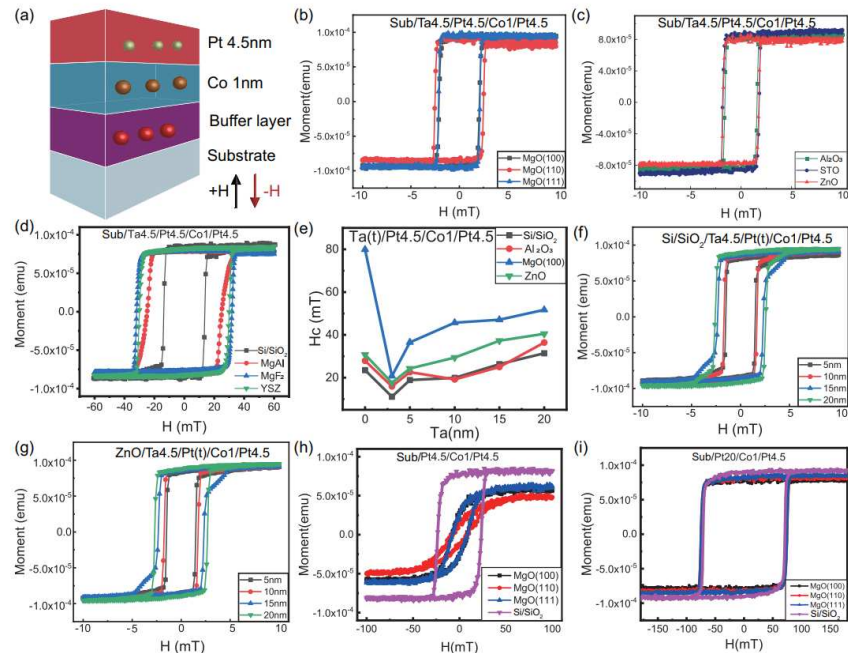


Figure IV.4. Comportement magnétique des structures sub./buffer/Co(1)/Pt(4.5) où le buffer est une bicouche Ta/Pt ou une couche épaisse de Pt. (a) Schéma des structures. (b,c,d) Cycles d'hystérésis hors-plan de Ta(4.5) / Pt(4.5) / Co(1) / Pt(4.5) sur MgO (100), (110) et (111) (b), Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, STO et ZnO (c) et Si/SiO<sub>2</sub>, MgAl, MgF<sub>2</sub> et YSZ (d). (e) Champ coercitif en fonction de

l'épaisseur  $t$  de Ta dans les films Ta( $t$ ) / Pt(4.5) / Co(1) / Pt(4.5) sur Si/SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO(100) et ZnO. (f, g) Cycles d'hystérésis hors-plan des films Ta(4.5) / Pt( $t$ ) / Co(1) / Pt(4.5) sur Si/SiO<sub>2</sub> et ZnO, respectivement, avec l'épaisseur  $t$  de la première couche de Pt égale à 5, 10, 15 et 20 nm. (h,i) Cycles d'hystérésis hors-plan des films Pt(4.5) / Co(1) / Pt(4.5) et Pt(20) / Co(1) / Pt(4.5), respectivement, sur MgO (100), (110) et (111) et Si/SiO<sub>2</sub>.

#### IV.2.3 Conditions de croissance

J'ai mené une étude systématique en fonction des conditions de dépôt (pression, température), afin d'assurer que la PMA est bien obtenue suivant différentes conditions [Carcia1986]. J'ai choisi pour cette étape d'utiliser le plus souvent des substrats Si/SiO<sub>2</sub>, car d'une part le coût des substrats est très faible et d'autre part ils sont couramment utilisés dans la recherche et l'industrie.

La figure IV.5(a) montre la structure Si / SiO<sub>2</sub> / Ta (3) / Pt (3) / Co ( $t$ ) / Pt (3), où l'épaisseur  $t$  de la couche de Co varie de 0,6 à 1,2 nm. L'image en HRTEM en section transverse de l'échantillon avec une épaisseur de Co de 0,9 nm montre que les couches de Ta, Pt, Co et Pt, déposées successivement, sont bien définies avec de faibles rugosités et d'interdiffusion d'interface (Fig.IV.5(b)). La couche tampon de Ta est bien texturée et les plans réticulaires Pt (111) et Co (002) sont visualisés dans le film. Cela montre une fois de plus que la couche tampon de Ta favorise une texture préférentielle des couches successives. Les mesures de l'anisotropie magnétique ont été réalisées par VSM ou par MOKE. La PMA est bien présente dans tous les films dans les empilements Ta(3)/Pt(3)/Co( $t$ )/Pt(3) (Fig.IV.5(c)). Le champ coercitif ( $H_c$ ) varie de 11 à 15 mT, en fonction de l'épaisseur  $t$  de Co. Il dépend aussi de la pression lors du dépôt des couches minces. La coercivité augmente d'abord, puis diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche de Co à différentes pressions de dépôt (Fig.IV.5(d)).



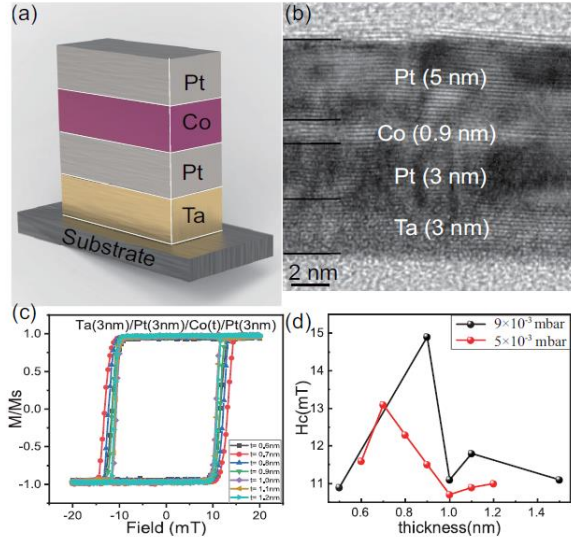


Figure IV.5. PMA dans les empilements Ta(3nm) / Pt(3nm) / Co(t) / Pt(3nm) sur Si/SiO<sub>2</sub>. (a) Disposition des couches. (b) Image HRTEM en section transverse de l'empilement avec une couche de Co de 0,9 nm d'épaisseur. (c) Cycles d'hystérésis hors plan avec différentes épaisseurs t de Co. (d) Variation du champ coercitif (H<sub>c</sub>) en fonction de l'épaisseur de Co et de la pression de dépôt.

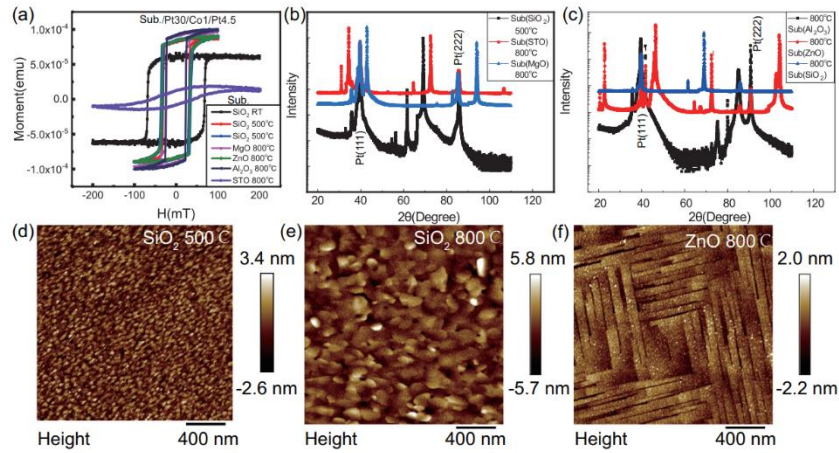


Figure IV.6. Effet de la température de dépôt de la première couche de Pt sur la structure sub./Pt30/Co1/Pt4.5. (a) Cycles d'hystérésis hors plans des films sur Si/SiO<sub>2</sub>, MgO, ZnO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et STO où la température indiquée est celle du dépôt de la première couche de Pt. (b,c) Diffraction des rayons X. (d,e,f) Images AFM des films sur SiO<sub>2</sub> et ZnO.

Nous modifions également la température de dépôt lors de la première couche de Pt visant à modifier l'état cristallin et l'anisotropie magnétique de Pt/Co [Lee2013, Young2013]. Pour tester l'effet de la température, une première couche épaisse de Pt de 30 nm a été déposée à haute température (500 et 800°C) et suivie d'une couche de Co de 1 nm à température ambiante sur différents substrats, Si/SiO<sub>2</sub>, MgO, ZnO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et STO. La PMA est préservée dans les films, sauf dans le cas de STO (Fig.VI.6(a)). On remarque que pour la plupart des substrats, les cycles d'hystérésis sont similaires, ce qui montre que la couche épaisse de Pt a bien découplé la couche de Co et le substrat. Le cas de STO indique en plus que l'adhésion et la cristallisation de la première

couche de Pt en relation avec le substrat impacte la texture et la cristallinité de la couche de Co et conditionne sa PMA. Les échantillons ont été analysés par XRD (Fig.IV.6(b,c)). Les pics de Pt (111) et (222) ont été clairement identifiés. Lorsque nous augmentons la température de dépôt de la couche Pt dans les films à base de  $\text{SiO}_2$ , les pics s'affinent et la cristallinité du film s'améliore. La morphologie de surface a été examinée par AFM. Avec l'augmentation des températures de dépôt de la première couche de Pt, il y a eu clairement un accroissement des tailles de grains dans les films sur  $\text{SiO}_2$  (Fig.IV.6(d-f)).

### IV.3 Analyse de domaines magnétiques dans Pt/Co sur substrats rigides

Le cycle d'hystérésis par magnétométrie MOKE ou VSM décrit le comportement global et moyenné de l'aimantation d'un échantillon, sans pouvoir préciser des détails sur le mode de renversement de l'aimantation. Par exemple, pour deux échantillons ayant des champs coercitifs quasi-identiques, le mode de nucléation et la propagation de domaines magnétiques inverses peuvent être complètement différents. Par conséquent, la microscopie Kerr est un outil extrêmement utile et complémentaire pour analyser les domaines magnétiques spatialement et temporellement.

#### IV.3.1 Nucléation de domaines magnétiques

L'observation des domaines se fait par microscopie Kerr polaire. Dans un premier temps, l'aimantation de l'échantillon est saturée dans un sens par un champ d'environ deux fois le champ coercitif  $H_c$  pendant 20 ms. Puis, dans le sens inverse et partant d'un champ proche de  $-H_c$ , nous essayons de nucléer un domaine avec des courtes impulsions de  $0,1\mu\text{s}$  à plusieurs dizaines de ms. Nous répétons le procédé en variant le champ et la durée de l'impulsion.

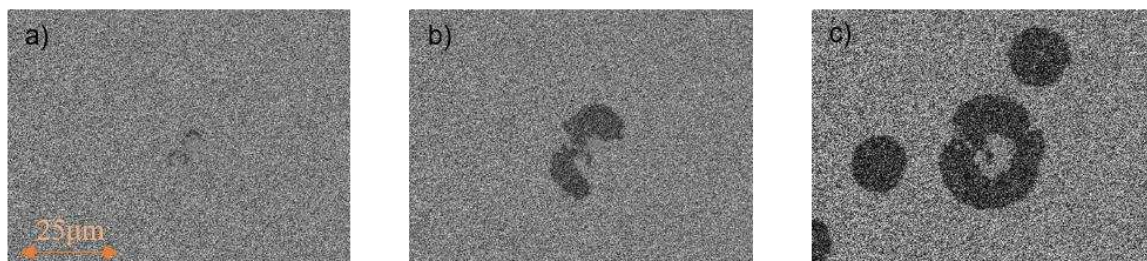


Figure IV.7. Nucléation de domaines magnétiques (parties sombres) dans  $\text{Si/SiO}_2/\text{Ta}_3/\text{Pt}_3/\text{Co}_1/\text{Pt}_3$  par microscopie Kerr polaire. a) Après impulsion de  $-16\text{ mT}$  et de  $200\text{ ms}$ . b) Après une impulsion de  $-20\text{ mT}$  et de  $5\text{ ms}$ . c) Après une impulsion de  $-30\text{ mT}$  et de  $1\text{ ms}$ .

Pour l'échantillon Si/SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>3</sub>/Co<sub>1</sub>/Pt<sub>3</sub>, le champ coercitif mesuré par MOKE est de 18 mT. Quand on l'examine plus en détails en imagerie, un champ minimum de -16 mT durant 200 ms est nécessaire pour nucléer un domaine (partie sombre dans Fig.IV.7(a)). Des impulsions supplémentaires de -20 et -30 mT grandissent le domaine et en créent d'autres (Fig.IV.7(b,c)). Quand l'observation est faite à une échelle plus globale, on constate qu'il existe des points réfractaires ou centres de piégeage pour la propagation de domaines (parties claires dans Fig.IV.8). Les centres de piégeage sont vraisemblablement liés aux défauts structuraux dans le film.

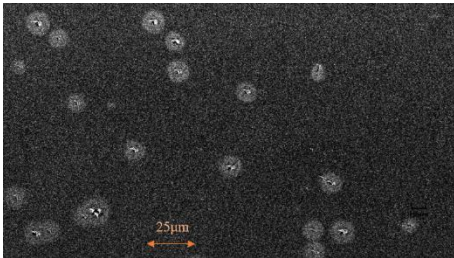


Figure IV.8. Piégeages de domaines magnétiques (parties claires) sur les défauts structuraux dans Si/SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>3</sub>/Co<sub>1</sub>/Pt<sub>3</sub> après une impulsion de 10 ms avec un champ de 20 mT.

#### IV.3.2 Propagation de domaines magnétiques

Il est important de caractériser la nucléation et les formes des domaines magnétiques et d'analyser leur propagation (régime, vitesse), dans le but ultime de manipuler les domaines. Le déplacement de domaines magnétiques est à la base du concept « racetrack memory » par exemple, pour l'industrie des mémoires [Parkin2008]. Des études ont montré que le mouvement de parois de domaines est affecté par la taille, la structure, la température de croissance ou de recuit et l'épaisseur des empilements [Fukami2014, Denis2018]. Le renversement de l'aimantation est dominé par la propagation de domaines ou par la nucléation de petits domaines multiples dans des conditions dynamiques rapides [Fukumoto2005, Fukumoto2006].

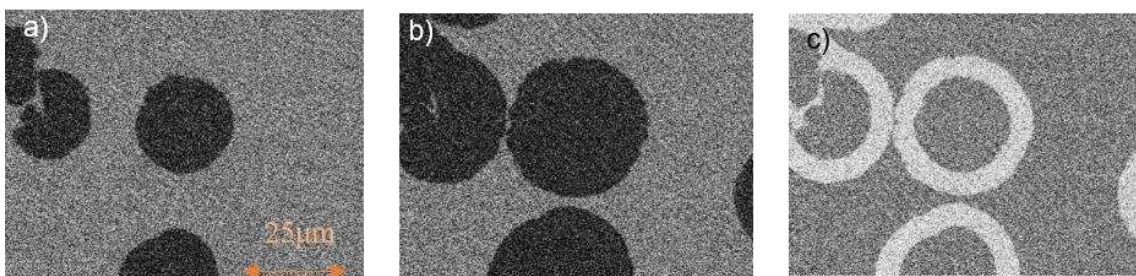


Figure IV.9. Domaines dans Si/SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>3</sub>/Co<sub>1</sub>/Pt<sub>3</sub> par microscopie Kerr polaire. a) Domaines créés (parties sombres) par une impulsion de -30 mT et de 1 ms. b) Domaines après une impulsion supplémentaire de 0,5 ms. c) Différence entre les images a) et b) où la progression des domaines est visualisée par les parties claires.

Pour mesurer la propagation de domaines, nous nucléons des domaines par une première impulsion du champ magnétique et appliquons de courtes impulsions supplémentaires

(Fig.IV.9(a,b)). La différence entre les domaines avant et après chaque impulsion nous fournit la vitesse de propagation de domaines (Fig.IV.9(c)). La répétition de la procédure pour différentes valeurs du champ nous permet d'accéder au régime et à la vitesse de propagation de domaines en fonction du champ magnétique (Fig.IV.10). Dans le cas présent, la vitesse de propagation est quasi-linéaire en fonction du champ magnétique au-delà 25 mT, alors que la propagation est dendritique en-dessous de 25 mT. La mobilité de parois de domaines est alors de 1,6 m/s à 25 mT et atteint 10 m/s à 50 mT. On remarque que la courbe de la vitesse en fonction du champ ne coupe pas l'axe horizontal à l'origine asymptotiquement, mais à un champ de seuil vers 20 mT (Fig.IV.10). Par conséquent, on n'est pas ici dans un régime pour un film sans défaut, ni dans le régime dit « Flow » pour un film avec défauts, mais plutôt dans le régime de dépiégeage.

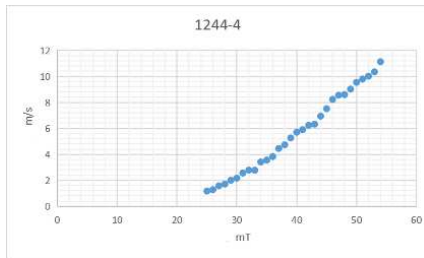


Figure IV.10. Vitesse de propagation de parois de domaines dans Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>3</sub>/Co<sub>1</sub>/Pt<sub>3</sub> en fonction du champ magnétique appliqué. Les vitesses pour des champs inférieurs à 25 mT n'ont pas été reportées, car la propagation des domaines est très dendritique.

Des films sur MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et MgF<sub>2</sub> ont été examinés par microscopie Kerr (Fig.IV.11). Dans le film Ta<sub>3</sub> / Pt<sub>3</sub> / Co<sub>1</sub> / Pt<sub>3</sub> sur MgO et après avoir appliqué une impulsion de champ de 20 mT de 1 et 0,5 s, le mouvement des parois de domaines s'accélère et les domaines s'agrandissent (Fig.IV.11(a,b)). Le phénomène est similaire dans le film Ta<sub>3</sub> / Pt<sub>3</sub> / Co<sub>1.5</sub> / Pt<sub>3</sub> sur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Fig.IV.11(c,d)). En comparaison avec les films déposés sur MgO, la taille des domaines magnétiques dans le film sur MgF<sub>2</sub> est beaucoup plus petite et il faut un champ plus grand et plus d'impulsions pour initier la nucléation et provoquer la propagation de domaines (Fig.IV.11(e,f)). Avec le dépôt à haute température (800°C) de la première couche de Pt de 20 nm, les domaines sont plus grands et la propagation plus rapide dans le film Pt<sub>20</sub> / Co<sub>1</sub> / Pt<sub>3</sub> sur MgO (Fig.IV.11(g,h)). Il est vraisemblable que la température a amélioré la première couche de Pt en cristallinité et favorisé la texture du reste des couches.

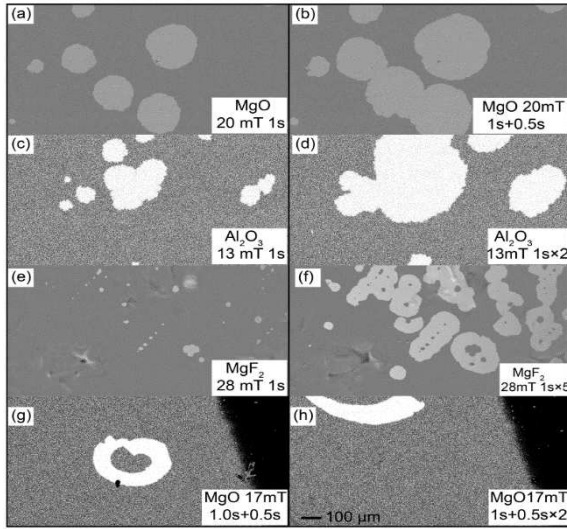


Figure IV.11. Domaines magnétiques dans des films Pt/Co/Pt par microscopie Kerr. Film Ta3 / Pt3 / Co1 / Pt3 sur MgO après une impulsion de 20 mT de 1 s (a) et avec une impulsion supplémentaire de 0.5 s (b). Film Ta3 / Pt3 / Co1.5 / Pt3 sur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> après une impulsion de 13 mT de 1 s (c) et avec une impulsion supplémentaire de 1 s (d). Film Ta3 / Pt3 / Co1 / Pt3 sur MgF<sub>2</sub> après une impulsion de 28 mT de 1 s (e) et avec quatre impulsions supplémentaires de 1 s (f). Film de Pt20 / Co1 / Pt3 sur MgO avec la première couche de Pt déposée à 800°C après deux impulsions de 17 mT de 1 s et 0.5 s (g) et avec une impulsion supplémentaire de 0.5 s (h).

### IV.3.3 Mécanismes de piégeages

On peut remarquer que la nucléation de domaine a lieu souvent sur un défaut structural du film et que la propagation de domaines peut être bloquée à des points particuliers [Sanchez2010, Kim2014, Bencan2020]. Le piégeage de l'aimantation est un problème technologique concret pour le développement de nouveaux dispositifs, comme par exemple les rastrack memory. La réduction, la suppression de centres de piégeage et le contrôle du dépiégeage constituent des défis pour la spintronique.

Les centres de piégeage peuvent être dus à des défauts structuraux, aux contraintes (effet magnéto-élastique), aux orientations cristallines des grains ou même à des limitations géométriques (constriction magnétique) parfois créées artificiellement lors de la nano-fabrication des dispositifs. Dans l'échantillon Co/Pt 358 (Si/SiO<sub>2</sub>/Pt20/Co1/Pt3), nous observons par AFM des défauts de croissances et des excroissances de 35 nm de hauteur (Fig.IV.12) qui peuvent constituer des sièges de nucléation de domaines ou au contraire des barrières pour la propagation de domaines (Fig.IV.13). Ces défauts engendrent également des effets aléatoires pour la nucléation et la propagation des parois de domaines. La stochasticité du piégeage d'une paroi de domaine sur des défauts naturels (défauts structuraux) ou artificiels (constrictions) a été intensément étudiée depuis les années 2000 [Attane2006, Briones2008, Hayashi2008]. Car, cela pose un problème de fiabilité et de reproductibilité dans les dispositifs pour des applications. Le dépiégeage nécessite une augmentation du champ à appliquer ou de la durée de l'application du champ. Parfois, on a recours à l'activation thermique par exemple avec l'énergie apportée par des pulses laser.

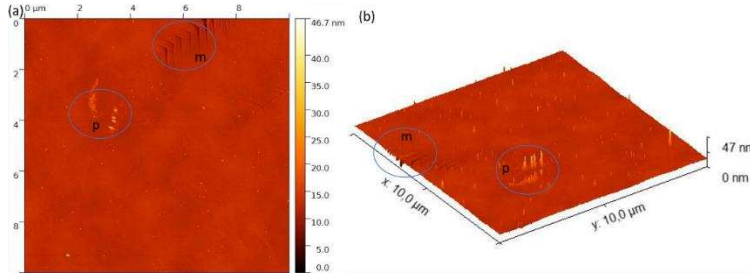


Figure IV.12. Images AFM (a,b) du film Co/Pt358 (Si / SiO<sub>2</sub> / Pt20 / Co1 / Pt3) où des défauts structuraux (repère m) et des excroissances (repère p) de hauteur 35 nm ont été observés.

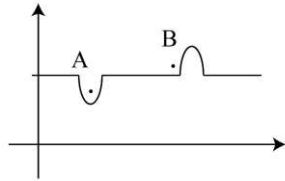


Figure IV.13. Schéma de principe de barrières d'énergie créées par deux défauts A et B et vues par une paroi de domaine.

#### IV.4 Système Pt/Co sur substrats flexibles

L'étude systématique sur les films basés sur Pt/Co ne serait pas complète sans aborder des films sur substrats flexibles. Un des objectifs de cette recherche est d'obtenir une PMA sur la plus grande variété de substrats possible dont substrats flexibles qui ouvrent des perspectives d'applications importantes. Trois types de substrats ont été sélectionnés, le Kapton, le PET (Polytéréphtalate d'éthylène) et le PEN (Polynaphtalate d'éthylène). Le Kapton peut maintenir les propriétés mécaniques dans les conditions les plus difficiles et a une très grande isolation électrique. Le PET possède une excellente résistance à l'usure, une résistance à la friction, une stabilité dimensionnelle et une isolation électrique. Le PEN a des propriétés physiques et mécaniques intéressantes, une stabilité chimique, une résistance à la chaleur et aux ultraviolets (UV) et une résistance au rayonnement plus élevés que le PET. Malheureusement, des substrats flexibles comme PET et PEN ne peuvent pas se maintenir sous température élevée, de sorte que nous ne pouvons pas appliquer la température élevée lors du dépôt. Ainsi, l'élaboration des dispositifs sur substrats souples ne s'est fait qu'à température ambiante pour les films sur PET et PEN.

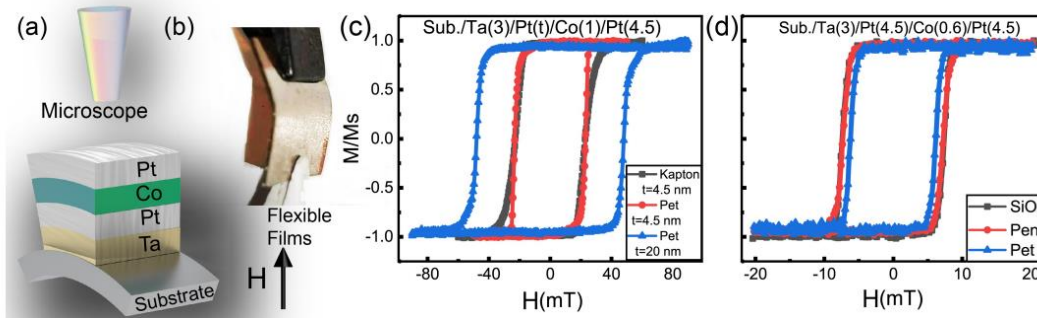


Figure IV.14. Empilements Ta/Pt/Co/Pt sur substrats rigides et souples. (a) Schéma de l'échantillon sur substrat souple. (b) Photographie d'un échantillon sur substrat souple. (c) Cycles d'hystérésis hors plan des films Ta(3) / Pt(t) / Co(1) / Pt(4.5) sur Kapton et PET, en modifiant l'épaisseur  $t$  de la première couche de Pt. (d) Comparaison des cycles d'hystérésis des films Ta(3) / Pt(4.5) / Co(0.6) / Pt(4.5) sur substrats souples (PET et PEN) et rigide (Si/SiO<sub>2</sub>).

L'empilement Ta/Pt/Co/Pt a été déposé sur substrats souples, Kapton, PET et PEN (Fig.IV.14(a)). Avant de mesurer les cycles d'hystérésis magnétiques, les échantillons ont été manipulés et tordus plusieurs fois afin de tester leur résistance à la distorsion et leur performance magnétique persistante (Fig.IV.14(b)). Nous pouvons constater que tous les films ont une forte PMA (Fig.IV.14(c,d)). Avec l'épaisseur de Co de 1 nm et celle de la première couche de Pt de 4.5 nm, les cycles d'hystérésis hors plan sont proches pour les films sur Kapton et PET (Fig.IV.14(c)). Quand l'épaisseur de la première couche de Pt est augmentée à 20 nm, la coercivité est renforcée, ce qui peut être attribué à une meilleure texturation de Co grâce à l'interface entre Pt et Co. Nous avons aussi essayé de diminuer l'épaisseur de Co, jusqu'à 0.6 nm. Il faut souligner que nous continuons d'obtenir une forte PMA du film (Fig.IV.14(d)), ce qui démontre que nous pouvons réaliser des dispositifs spintroniques basés sur substrats souples sans chauffer.

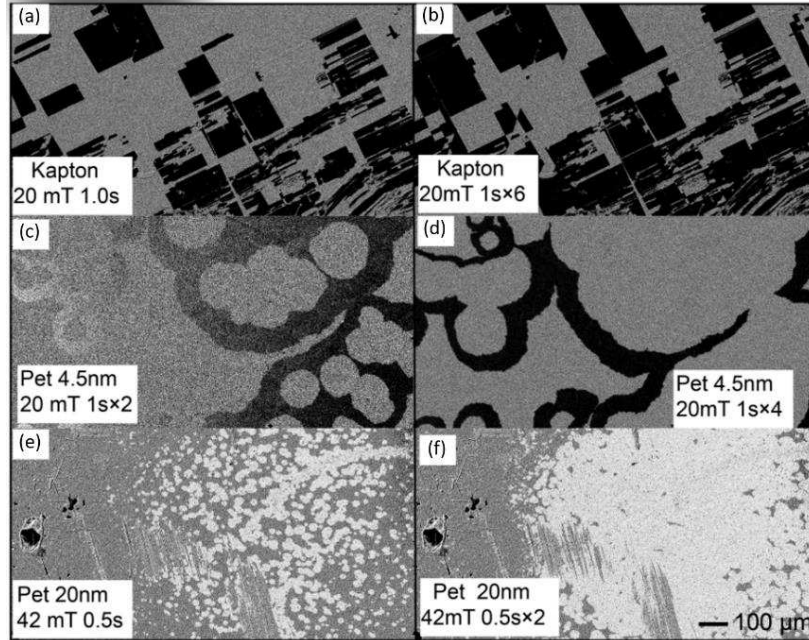


Figure IV.15. Domaines magnétiques dans des films Ta(3) / Pt(t) / Co(1) / Pt(3) sur substrats souples. (a,b) Sur Kapton avec  $t = 4,5$  nm après une et six impulsions de 20 mT de 1 s, respectivement. (c,d) Sur PET avec  $t = 4,5$  nm après une et quatre impulsions de 20 mT de 1 s. (e,f) Sur PET avec  $t = 20$  nm après une et deux impulsions de 42 mT de 0.5 s.

Pour mieux comprendre les propriétés magnétiques des films flexibles, l'analyse par microscopie Kerr a été menée. Lorsque nous appliquons de plus en plus d'impulsions magnétiques, le mouvement de parois de domaines accélère pour atteindre une vitesse d'environ dizaines de microns par seconde, de sorte que le mouvement de parois de domaines soit en régime de fluage (Fig.IV.14). Dans le régime de fluage, l'accroissement de la vitesse du mouvement des parois de domaines est largement plus rapide que l'accroissement du champ [Burrowes2013]. Ainsi, le facteur déterminant pour le mouvement de parois de domaines dans le cas présent est le champ magnétique. Comme le montre la figure IV.15, bien que la vitesse de mouvement de parois de domaines provoquée dans les mesures ait été similaire dans les différents films, le champ nécessaire pour initier la nucléation et provoquer la propagation a été plus que doublé pour le film avec la première couche de Pt de 20 nm (Fig.IV.15(e,f)) au lieu de 4.5 nm (Fig.IV.15(c,d)). Cela montre que lorsque l'épaisseur de la couche Pt augmente, les parois de domaines sont plus difficiles à déplacer. Dans le film avec 20 nm de Pt, il y a une abondance de centres de nucléation simultanément. Afin d'éviter une croissance rapide des bulles de domaine magnétique et leurs chevauchements, nous utilisons des impulsions magnétique un peu plus courtes (0.5 s) (Fig.IV.15(e,f)). Nous avons ainsi mis en évidence deux modes de renversement de l'aimantation différents dans des films sur substrats souples avec différentes épaisseurs de la première couche de



Pt. Dans les films avec 4.5 nm de Pt, le renversement de l'aimantation est initié par des centres de nucléations de domaines et dominés par leur propagation. Avec 20 nm de Pt, le renversement se déroule en multipliant les centres de nucléation avec une propagation limitée dans l'espace du fait de la haute densité de centres de nucléation.

## IV.5 Irradiation ionique sur les couches Pt/Co

Le traitement thermique est la technique la plus courante pour changer et améliorer des propriétés des matériaux. Malheureusement, un recuit n'est pas possible dans le cas des substrats souples et avec des couches sensibles à la température. Je propose ici d'utiliser une technique alternative et innovante : irradiation par ions légers He<sup>+</sup>. Ce procédé permet de décroître la température de recuit, voire de travailler à la température ambiante dans certains cas [Bernas2003, Xu2019, Sud2021].

### IV.5.1 Procédé d'irradiation des couches Pt/Co

Le vide de base dans la chambre d'irradiation est d'environ  $2 \times 10^{-9}$  mbar. S'il est nécessaire d'irradier en température, nous débutons la montée en température et stabilisons la température pendant 15 minutes. Le circuit du gaz d'hélium est d'abord purgé. Nous remplissons la source de l'hélium jusqu'à une pression de  $25.2 \times 10^{-6}$  mbar. L'étape la plus cruciale est le démarrage de la source microondes et le déclenchement du plasma. Une fois un faisceau d'ions He<sup>+</sup> obtenu, nous réglons son centrage à l'aide d'un cache de mesure et l'intervalle de son balayage suivant 2 directions (Tab.V.1). L'irradiation de l'échantillon démarre en escamotant le cache devant l'échantillon.

Tableau V.1. Quatre séries de valeurs usuelles utilisées pour une irradiation à 34  $\mu$ A de He<sup>+</sup>.

|                                    |          |            |           |           |
|------------------------------------|----------|------------|-----------|-----------|
| Intensité du faisceau ( $\mu$ A)   | 34       |            |           |           |
| Voltage source (kV)                | 5        |            |           |           |
| Voltage 2 <sup>nd</sup> étage (kV) | 0        | 5          | 10        | 15        |
| Voltage total (kV)                 | 5        | 10         | 15        | 20        |
| Flux He (sccm)                     | 0.456    |            |           |           |
| Vide ( $10^{-6}$ mbar)             | 25.2     |            |           |           |
| Fréquence microondes (Hz)          | 2462     |            |           |           |
| Puissance (W)                      | 21       |            |           |           |
| Puissance réfléchie (W)            | 7.2      |            |           |           |
| Centrage (X/Y) du faisceau (kV)    | 0.1/-0.2 | 0.15/-0.28 | 0.2/-0.32 | 0.35/-0.4 |

|                         |     |     |     |     |
|-------------------------|-----|-----|-----|-----|
| Balayage X à 1 Hz (kV)  | 0.5 | 0.7 | 1.0 | 1.1 |
| Balayage Y à 20 Hz (kV) | 0.7 | 1.2 | 1.5 | 1.9 |

La quantité d'ions  $Q$ , en unité de Coulomb, interagissant directement avec l'échantillon est le produit de l'intensité du faisceau  $I$  et de la durée  $t$  de l'exposition :  $Q = I \times t$ . La densité d'ions  $D$  par unité de surface  $S$  est donnée par :  $D = Q / (S \times 1.6 \times 10^{-19})$ . A titre d'exemple, avec un courant d'ions de  $34 \mu\text{A}$  durant  $60 \text{ s}$  sur une surface balayée de  $20 \times 20 \text{ mm}$ , nous obtenons  $93,5$  ions par  $\text{nm}^2$ , soit  $0,94 \cdot 10^{16}$  ions/ $\text{m}^2$  par minute.

#### IV.5.2 Effet de l'irradiation sur les couches Pt/Co

Ce qui est important pour le traitement par ions  $\text{He}^+$  est de rester dans le régime « irradiation » et de ne pas aboutir à une « implantation ionique » dans les films. Afin d'optimiser les conditions, j'ai procédé à des simulations avec le logiciel SRIM sur un empilement typique  $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Ta}_3/\text{Pt}_3/\text{Co}_1/\text{Pt}_3$ . Nous pouvons voir que les ions  $\text{He}^+$  de  $20 \text{ keV}$  traversent la tricouche  $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pt}$  et s'implantent dans le substrat aux alentours de  $200 \text{ nm}$  (Encart (j) dans Fig.IV.16(a)). Les ions de  $6 \text{ keV}$  remplissent encore la condition d'irradiation pour la tricouche  $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pt}$  et s'implantent essentiellement dans la couche  $\text{SiO}_2$  aux alentours de  $50 \text{ nm}$  de profondeur (Encart (i) dans Fig.IV.16(a)), les ions de  $6 \text{ keV}$  apportent assez d'énergie pour faire bouger les atomes dans la tricouche  $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pt}$  sur une courte distance, sans provoquer des collisions en chaîne (Fig.IV.16(b)). Un examen plus détaillé montre que l'interdiffusion aux interfaces provoqué l'irradiation est assez limitée dans ces conditions (Fig.IV.16(c)). De ces simulations, on peut conclure qu'un faisceau  $\text{He}^+$  d'énergie de  $6$  à  $20 \text{ keV}$  est adéquat pour l'irradiation de nos tricouches  $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pt}$  et induit un déplacement d'atomes à courte distance (nm) et une faible interdiffusion aux interfaces.

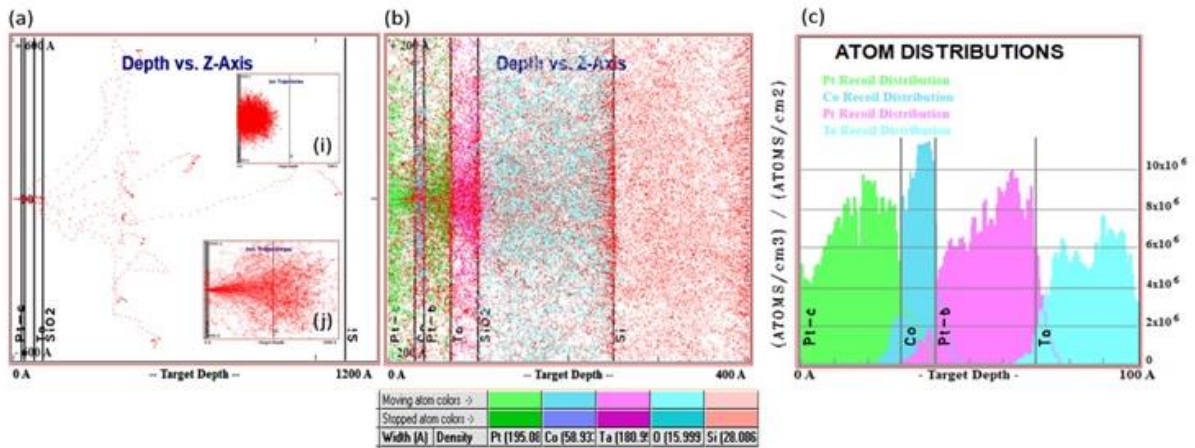


Figure IV.16. Simulation de l'irradiation ionique He<sup>+</sup> de Si/SiO<sub>2</sub>/Ta3/Pt3 (Pt-b) /Co1/Pt3 (Pt-c) où les labels Pt-b et Pt-c désignent Pt buffer layer et cap layer, respectivement. (a) Trajectoire de 10 ions He<sup>+</sup> de 6 keV en fonction de la profondeur de l'échantillon où les différentes interfaces dans l'empilement sont indiquées par des traits verticaux. Encart (i), trajectoire de 2000 ions de 6 keV ; encart (j), trajectoire de 1000 ions de 20 keV. (b) Trajectoire de 2000 ions He<sup>+</sup> de 6 keV et déplacements des atomes. (c) Redistributions des atomes de Ta, Pt-b, Co et Pt-c, après irradiations ionique de 6 keV.

Pour analyser l'effet d'irradiation sur les domaines magnétiques, cinq conditions d'irradiation différentes (IR1-IR8 dans Tab.IV.2) ont été utilisées sur le film Ta3/Pt3/Co1/Pt3 sur substrat Si/SiO<sub>2</sub>, avec une tension d'accélération des ions He<sup>+</sup> variant de 6 à 22 keV. Les cycles d'hystérésis hors plan du film montrent une réduction du champ coercitif continue de 18,5 à 13 mT, en fonction de la dose d'exposition du film aux ions (Fig.IV.17). Une dose importante (IR8) détruit la PMA et fait basculer l'axe facile d'aimantation.

Tableau IV.2 Conditions d'irradiation par ions He<sup>+</sup> du film Ta3/Pt3/Co1/Pt3 sur substrat Si/SiO<sub>2</sub>.

| Label              | Tension (kV) | Courant (μA) | Durée (min) | Dose (10 <sup>16</sup> ions/cm <sup>2</sup> ) |
|--------------------|--------------|--------------|-------------|---|
| N-IR (non irradié) | -            | -            | -           | -   |
| IR1                | 6            | 13           | 6           | 2.16  |
| IR2                | 7            | 17           | 5           | 2.35  |
| IR3                | 8            | 40           | 4           | 4.42  |
| IR4                | 9            | 40           | 4           | 4.42  |
| IR8                | 22           | 85           | 6           | 14  |

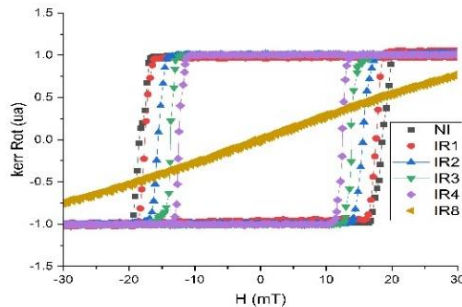


Figure IV.17. Cycles d'hystérésis des films Ta3/Pt3/Co1/Pt3 sur substrat Si/SiO<sub>2</sub> en fonction de conditions d'irradiation.

Le champ minimum pour la première nucléation de domaines est de 17 mT dans l'échantillon non-irradié (N-IR) et décroît en 16, 13, 10 et 10 mT pour IR1, IR2, IR3 et IR4, respectivement. La baisse du champ de nucléation est corrélée avec la dose d'irradiation. Dans le film IR1, une impulsion de 1 ms du champ de 20 mT, au-delà du champ coercitif de 16 mT, génère des domaines inverses, mais de formes irrégulières (Fig.IV.18(a)). Des impulsions supplémentaires provoquent la propagation de domaines de façon dendritique (Fig.IV.18(b,c)). Des domaines de formes

régulières presque circulaires n’ont été obtenus qu’avec une brève impulsion de 0.1 s d’un champ plus élevé de 30 mT (Fig.IV.18(d)). Des résultats similaires ont été obtenus dans le film IR2 (Fig.IV.19(a,b,c)) et on observe, à partir de 25 mT, une propagation presque homogène de domaines de forme circulaire avec encore quelques zones de piégeage (Fig.IV.19(d)). Dans le film IR3, les domaines sont de forme circulaires et la propagation rapide avec des impulsions de 1 ms du champ de 20 mT (Fig.IV.20(a,b,c)). La forme dendritique des domaines n’apparaît que sous un champ inférieur à 16 mT. Ce qui est intéressant, c’est que le renversement presque complet de l’aimantation par une impulsion de 1 ms et de 25 mT conduit également à la forme dendritique du reste des domaines non encore inversés (Fig.IV.20(d)). Quand on compare les vitesses de propagation en fonctions du champ et de la dose d’irradiation, on observe une élévation de la vitesse de propagation pour un champ identique entre les échantillons irradiés et l’échantillon natif et un abaissement du champ de seuil (Fig. IV.21). La variation entre les échantillons irradiés n’est pas flagrante. Par conséquent, l’irradiation a modifié les centres de piégeage dans l’échantillon et abaissé les seuils de dépiégeage pour les domaines. La vitesse de propagation à fort champ dans les échantillons irradiés suit une pente passant par l’origine, ce qui veut dire que le régime de fluage est atteint rapidement, contrairement pour l’échantillon natif.

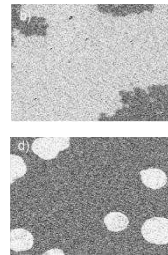
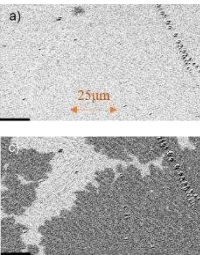
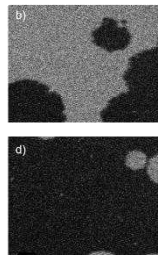
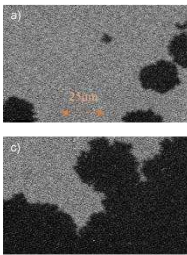


Figure IV.18. Domaines dans IR1. a,b,c) Après 1, 5 et 10 impulsions de 20 mT de 1 ms, respectivement. d) Après une impulsion de 30 mT et de 0.1 ms.

Figure IV.19. Domaines dans IR2. a,b,c) Après 1, 5 et 10 impulsions de 20 mT de 1 ms, respectivement. d) Après une impulsion de 25 mT et de 1 ms.

Figure IV.20. Domaines dans IR3. a,b,c) Après 1, 2 et 3 impulsions de 20 mT de 1 ms, respectivement. d) Après une impulsion de 16 mT et de 1 ms.

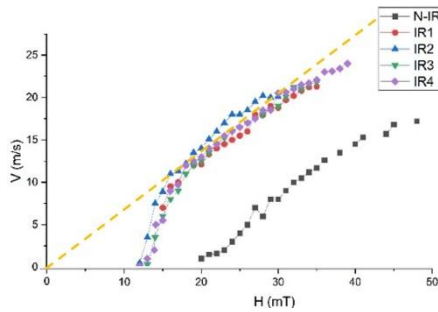


Figure IV.21. Vitesse de propagation de domaines en fonction du champ dans les échantillons Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>3</sub>/Co<sub>1</sub>/Pt<sub>3</sub> déposés sur Si/SiO<sub>2</sub> avec différentes doses d’irradiation où la pente moyenne de la vitesse à fort champ des échantillons irradiés est donnée par le trait en pointillé jaune.

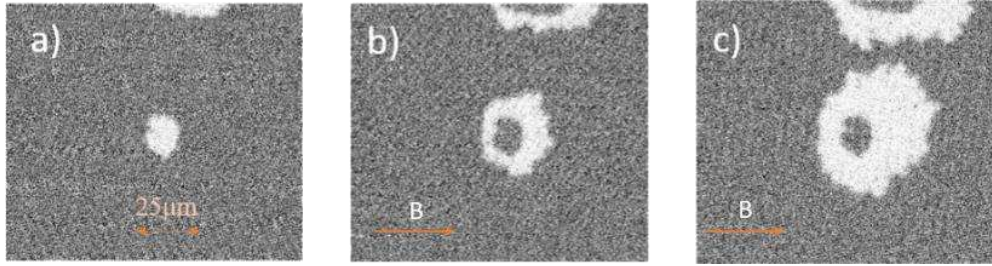


Figure IV.22. Domaines dans le film IR4. a) Après une impulsion de 10 ms du champ perpendiculaire de 16 mT. b,c) Différences d'images avec a) après 1 et puis 2 impulsions de 10 ms du champ transverse de 15 mT (B), respectivement.

Nous avons également testé de possibles asymétries dans le système en appliquant des impulsions du champ transverse. Dans le film IR4 et à partir de l'état de saturation, une impulsion de 10 ms du champ perpendiculaire de 15 mT génère des domaines inverses (Fig.IV.22(a)). Des impulsions supplémentaires du champ transverse de 15 mT ont été appliquées et les figures IV.22(b,c) montrent la différence avec l'état initial (Fig.IV.22(a)). On remarque que la propagation de domaines est inhomogène et se fait plus dans une direction préférentielle en relation avec la direction transverse du champ appliqué B. Le fait qu'un champ transverse agit sur les domaines d'aimantation perpendiculaire et de façon asymétrique sur la propagation de parois de domaines est extrêmement intéressant. Il faut souligner que l'asymétrie à l'interface avec Co est à la base de l'interaction DMI de Co. Nous allons poursuivre et approfondir l'étude et rechercher des phénomènes et effets asymétriques dans le système Pt/Co.

## IV.6 Conclusion sur le système Pt/Co

Nous avons déposé l'empilement Pt/Co sur des substrats rigides et souples. Avec une couche tampon de Ta ou une première couche de Pt épaisse, la PMA a été obtenue dans presque tous les types de films. Nous avons démontré que l'on peut modifier le champ coercitif  $H_c$  des films en relation avec le substrat et la couche tampon et en fonction des conditions de croissance (pression, température) et de la structure de l'empilement (épaisseurs des sous-couches). Nous avons analysé les domaines magnétiques par microscopie Kerr qui nous renseigne sur les modes de nucléation et de propagation des domaines. Des centres de piégeage ont été observés. Nous avons eu recours à l'irradiation par ions  $He^+$  pour diminuer les défauts. Nous avons pu obtenir une baisse du champ de nucléation des domaines, une amélioration dans la régularité de la forme de domaines et une augmentation de la vitesse de propagation de parois de domaines. Enfin, il faut souligner qu'au cours de ces études, nous avons réussi à réaliser des dispositifs spintroniques à base de Pt/Co notamment sur substrats souples.

## V. Contrôle de l'anisotropie magnétique du système Pt/Co

### V.1 Contrôle réversible de l'anisotropie de Pt/Co par transition de phases de VO<sub>2</sub>

L'anisotropie magnétique perpendiculaire de couches ultraminces est l'un des aspects les plus importants dans les technologies spintroniques de prochaine génération. Il est important de trouver un moyen efficace de moduler la PMA des couches. Dans ce travail, nous rapportons la modulation de l'anisotropie magnétique de Pt/Co par transition de phase VO<sub>2</sub> dans l'hétérostructure VO<sub>2</sub>/[Pt/Co]<sub>2</sub> [Wei2019].

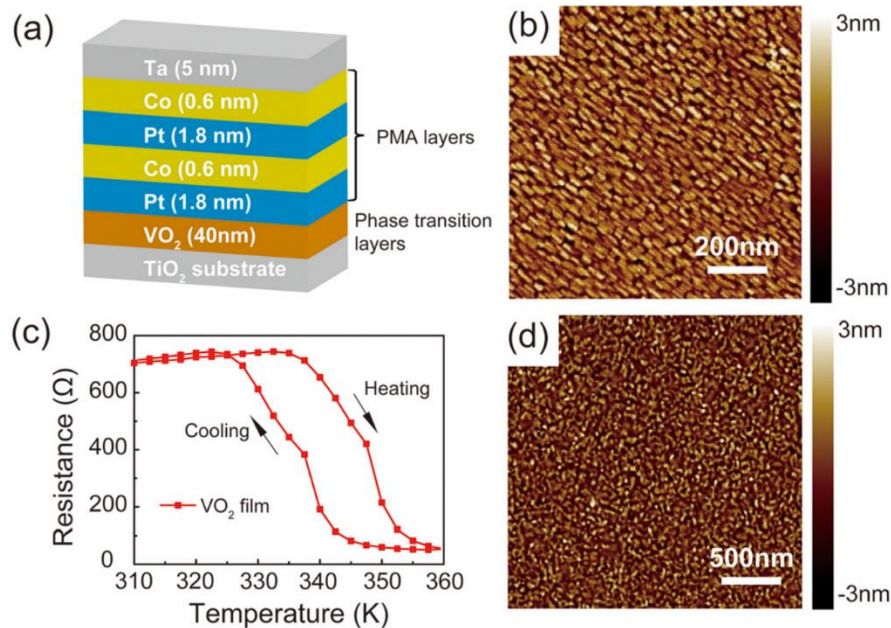
Comme les matériaux ferroélectriques, les matériaux de transition de phase peuvent également induire une déformation interfaciale par un changement de structures cristallines, lorsqu'ils sont en contact avec d'autres matériaux. Ainsi, on s'attend à une modulation par déformation, lorsqu'ils sont combinés à des matériaux spintroniques. De plus, les processus de transition de phase étant généralement très intenses, on espère obtenir un fort effet de régulation avec une faible énergie de déclenchement. Lorsque les structures cristallines changent complètement lors de la transition, la déformation interfaciale induite pourrait être extrêmement élevée. Un cas typique est VO<sub>2</sub>, lorsqu'il se transforme d'un isolant monoclinique (M1) en un métal rutile (R) à une température critique d'environ 340 K [Tao2012]. Par effet inverse, la transition de phase peut également être induite par la déformation, un courant électrique et la lumière [Tao2012, Jeong2013]. Il est à noter que l'échelle de temps de la transition de phase inhérente de VO<sub>2</sub> atteint l'ordre de 100 fs, ce qui signifie qu'une modulation de la PMA basée sur la transition de phase VO<sub>2</sub> a également un grand potentiel pour la spintronique ultra-rapide [Cavalleri2004, Kubler2007].

#### V.1.1 Elaboration et caractéristiques de l'hétérostructure TiO<sub>2</sub>/VO<sub>2</sub>/[Pt/Co]<sub>2</sub>

L'hétérostructure VO<sub>2</sub>/[Pt/Co]<sub>2</sub>, appelée PCMA (Phase-transition Controlled modulation of the Magnetic Anisotropy), est illustrée en Figure V.1(a). La couche mince de VO<sub>2</sub> a été déposée sur un substrat de TiO<sub>2</sub>(100) par dépôt par ablation laser pulsé (PLD) sous une pression de base de 2 Pa à 500°C. La fluence du laser et le taux de répétition ont été fixés à 4 J/cm<sup>2</sup> et 2 Hz, respectivement. Nous avons choisi TiO<sub>2</sub>(100) comme substrat, car le désaccord de paramètres de mailles entre VO<sub>2</sub> ( $b = 4,554 \text{ \AA}$ ,  $c = 2,856 \text{ \AA}$ ) et TiO<sub>2</sub> ( $b = 4,593 \text{ \AA}$ ,  $c = 2,959 \text{ \AA}$ ) est inférieur à 3,5% à

la température de dépôt et on peut donc s'attendre à une croissance épitaxiée. De plus, nos travaux antérieurs suggèrent qu'un meilleur effet de modulation peut être obtenu sur le substrat  $\text{TiO}_2$  orienté (100), en raison du plus grand changement de réseaux au cours de la transition de phase de  $\text{VO}_2$  par rapport à d'autres surfaces à faibles indices de  $\text{TiO}_2$ . La mesure AFM de la surface de l'échantillon après le dépôt de  $\text{VO}_2$  indique une surface lisse, avec une rugosité moyenne inférieure à 0,3 nm (Fig.V.1(b)), ce qui garantit la croissance de haute qualité des couches PMA. L'épaisseur de  $\text{VO}_2$  a été fixée à 20 nm pour obtenir l'effet de modulation approprié. Pour caractériser les propriétés de transition de phase du  $\text{VO}_2$ , la dépendance à la température de la résistance au film de  $\text{VO}_2$  a été étudiée par une méthode à deux sondes. Les mesures électriques ont été effectuées de 300 à 360 K et un cycle d'hystérésis typique peut être observé, montrant la température de transition lors du chauffage à environ 340 K.

Les couches PMA ont été déposées par pulvérisation cathodique magnétron à température ambiante et sont composées de  $[\text{Pt}(1.8\text{nm})/\text{Co}(0.6\text{nm})]_2$ . L'empilement a ensuite été recouvert d'une couche protectrice de Ta de 5 nm pour empêcher l'oxydation des couches. La surface finale de l'hétérostructure présente une morphologie polycristalline avec une distribution de grains de taille d'environ 10 nm qui forment une surface relativement lisse avec une rugosité moyenne de surface inférieure à 1 nm. Ces caractéristiques morphologiques répondent aux conditions de qualités nécessaires pour des applications d'enregistrement magnétique.



Figures V.1. Hétérostructure  $\text{TiO}_2/\text{VO}_2/[\text{Pt}/\text{Co}]_2/\text{Ta}$ . (a) Schéma de l'hétérostructure. (b) Image AFM du film  $\text{VO}_2$ , avant le dépôt de  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$ . c) Cycle d'hystérésis thermique de la résistance du film  $\text{VO}_2$ . (d) Image AFM de la surface finale de l'hétérostructure.

### V.1.2 Modulation réversible de l'anisotropie magnétique dans $\text{TiO}_2/\text{VO}_2/[\text{Pt}/\text{Co}]_2$

La résistance Hall a été mesurée pour étudier les propriétés magnéto-transport du film. Les courbes R-H mesurées à 300 K et 360 K montrent une nette différence avant et après la transition de phase de  $\text{VO}_2$  (Fig.V.2). La courbe R-H de l'échantillon à 300 K est non-linéaire et montre une boucle d'hystérésis. La forme rectangulaire de la résistance Hall anormale indique que le film a un axe magnétique perpendiculaire. Une courbe R-H arrondie sans hystérèse est observée à 360 K après la transition de phase. La différence entre 300 K et 360 K montre que le changement de phase du  $\text{VO}_2$  peut effectivement réguler les propriétés PMA de l'échantillon. En outre, cette modulation est totalement réversible. On retrouve le cycle rectangulaire à 300 K, en baissant à nouveau la température. Cette réversibilité a également été observée dans d'autres échantillons utilisés dans des travaux ultérieurs.

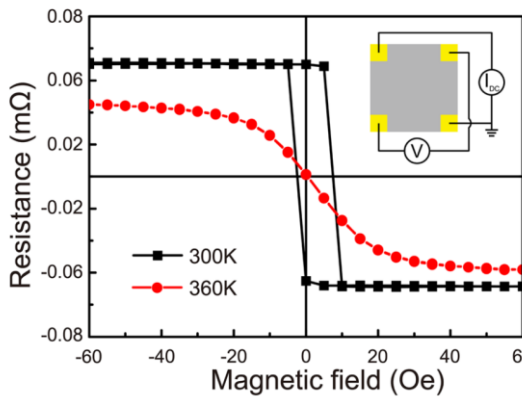


Figure V.2. Résistance Hall anormale de  $\text{TiO}_2/\text{VO}_2/[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  en fonction du champ magnétique, avant (300 K) et après (360 K) la transition de phases de  $\text{VO}_2$ . La géométrie des contacts utilisée pour la mesure est montrée dans l'encart en haut à droite.

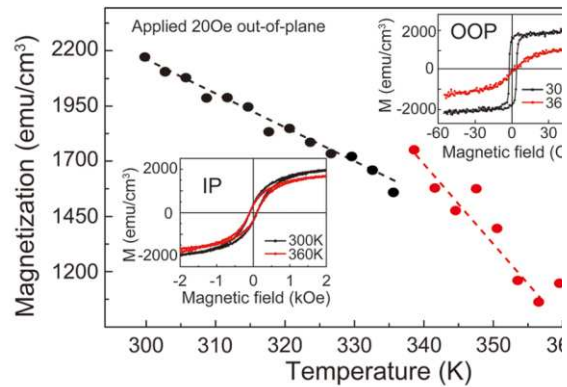


Figure V.3. Densité d'aimantation dans  $\text{TiO}_2/\text{VO}_2/[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  en fonction de la température, avec un champ magnétique de 20 Oe appliqué en hors plan (OOP). Les encarts montrent les cycles d'hystérésis dans le plan (IP) et en OOP, mesurés à 300 et 360 K respectivement.

Pour étudier plus en détail l'effet de modulation magnétique dans cette hétérostructure, des mesures d'aimantation ont été effectuées par VSM (figure V.3). La densité d'aimantation à saturation ( $M_s$ ) est de  $2020 \text{ emu/cm}^3$  à 300 K, ce qui est supérieur à la valeur d'un film de Co pur. Ce type d'augmentation a déjà été rapporté dans les multicouches Co/Pt et attribuée à la polarisation de Pt à l'interface Co/Pt [Emori2011]. On a mesuré l'aimantation de l'hétérostructure en fonction de la température avec un champ de 20 Oe appliqué en hors plan (OOP). L'aimantation diminue



avec l'augmentation de la température, en raison du champ de saturation ( $H_s$ ) en hors plan devenant plus grand dans ce processus (Fig.V.3). Il est à noter que la tendance à la diminution est très différente avant et après 340 K, ce qui est compatible avec la température de la transition de phase  $VO_2$ . Ce phénomène indique que la variation du magnétisme est en effet liée à la transition de phase de la couche de  $VO_2$ . Les encarts de la Figure V.3 montrent les boucles d'hystérésis du film mesurées avec un champ magnétique appliqué dans le plan (IP) et en OOP. Les résultats OOP sont cohérents avec les mesures de magnéto-transport, avec la rémanence passant de 99% à 0% (Fig.V.1(c)), alors qu'aucune différence évidente ne peut être trouvée entre les résultats IP à 300 et 360 K avec la rémanence variant de 20,3% à 20,7%. Nous avons également changé l'angle entre le champ magnétique et la normale de l'échantillon et obtenu des résultats consistants. Les résultats peuvent être résumés ainsi : la PMA de l'hétérostructure disparaît au cours de la transition de phases de  $VO_2$ , tandis que le plan du film reste un plan d'aimantation difficile. Cela signifie que la modulation induite par la transition de phase n'est pas basée sur la rotation de l'axe facile, mais vraisemblablement causé par la disparition de l'anisotrope uniaxiale [Meiklejohn1962, Choe1999]. Par conséquent, l'effet de modulation est très fort dans la direction originale de l'axe facile (OOP) et faible dans les autres directions.

Tableau V.1. Caractéristiques magnétiques de l'hétérostructure  $TiO_2/VO_2/[Pt/Co]_2$  à PMA contrôlée par transition de phase de  $VO_2$  où  $K_i$  est la contribution interfaciale à l'anisotropie magnétique.

| Temperature, K | $M_S$ , emu/cm <sup>3</sup> | $K_{eff}$ , erg/cm <sup>3</sup> | $K_{eff} t_{Co}$ , erg/cm <sup>2</sup> | $K_i$ , erg/cm <sup>2</sup> |
|----------------|-----------------------------|---------------------------------|--|-----------------------------|
| 300            | 2020                        | $7.5 \times 10^5$               | 0.09                                   | 3.16                        |
| 360            | 1730                        | $4.5 \times 10^5$               | 0.05                                   | 2.31                        |

Pour évaluer l'effet de modulation sur l'anisotropie magnétique, les paramètres magnétiques de l'hétérostructure avant et après la phase de transition sont résumés dans le tableau V.1. Nous avons analysé les courbes d'hystérésis IP et OOP du film et obtenu la densité d'énergie efficace pour l'anisotropie magnétique perpendiculaire,  $K_{eff}$ , qui diminue de 7,5 à 4.5 erg/cm<sup>3</sup>. Le rapport du changement d'énergie d'anisotropie magnétique, défini comme  $(K_{eff, 300K} - K_{eff, 360K}) / (K_{eff, 300K} + K_{eff, 360K})$ , atteint 25%, ce qui est comparable au changement d'anisotropie magnétique rapporté et induit par le champ électrique. Pour séparer les contributions du volume et de l'interface dans l'anisotropie globale  $K_{eff}$ , on peut écrire :  $K_{eff} = K_b - 2\pi M_S + K_i/t$ , où  $K_b$  est l'anisotropie du volume qui est essentiellement magnéto-cristalline ici,  $K_i$  l'anisotropie interfaciale,  $- 2\pi M_S$  le champ démagnétisant et  $t$  est l'épaisseur de Co. Il convient de noter que dans certains films épais contraints et monocristallins,  $K_i$  est ignoré et  $K_b$  est d'origine principalement magnéto-élastique et

représentée par  $K_{me}$ . Dans notre cas cependant, le film magnétique est polycristallin et très mince. Il est par conséquent plus raisonnable de prendre la contribution  $K_i$  en considération. Qui plus est, la contribution  $K_b$  est généralement négligeable dans les films minces polycristallins de Co. Dans ce cas, l'anisotropie perpendiculaire  $K_{eff}$  est dominée par la contribution interfaciale  $K_i$  qui agit contre le champ démagnétisant dû à la forme  $-2\pi M_s$ .

### V.1.3 Insertion d'une couche tampon et procédé précontraint

Pour confirmer l'hypothèse de modification apportée par la déformation induite par la transition de phases, un échantillon de référence a été préparé avec 3 nm de Ta inséré dans le film comme couche tampon de déformation entre les couches VO<sub>2</sub> et PMA. Dans ce cas-là, la distance entre la surface de VO<sub>2</sub> et l'interface Pt/Co est supérieure à 4,8 nm, c'est-à-dire autour de la limite de l'effet de déformation interfaciale. La mesure *in situ* par effet Kerr longitudinal a été utilisée pour étudier le changement de propriétés magnétiques à différentes températures. Comme illustré dans la figure V.4(a), seul un faible rétrécissement du champ coercitif peut être détecté avec l'augmentation de la température, et les boucles gardent leur cycle carré au cours de ce processus. Cependant, pour l'échantillon ordinaire sans la couche d'insertion, une variation significative du H<sub>s</sub> est observée, comme l'illustre la figure V.4(b). Lorsque la température est supérieure à 328 K, les courbes deviennent linéaires sans hystérésis comme une boucle superparamagnétique. Ce contraste marqué entre les échantillons avec et sans couche tampon de déformation confirme que l'effet de modulation dans l'échantillon repose sur le couplage d'interface entre les couches VO<sub>2</sub> et PMA.

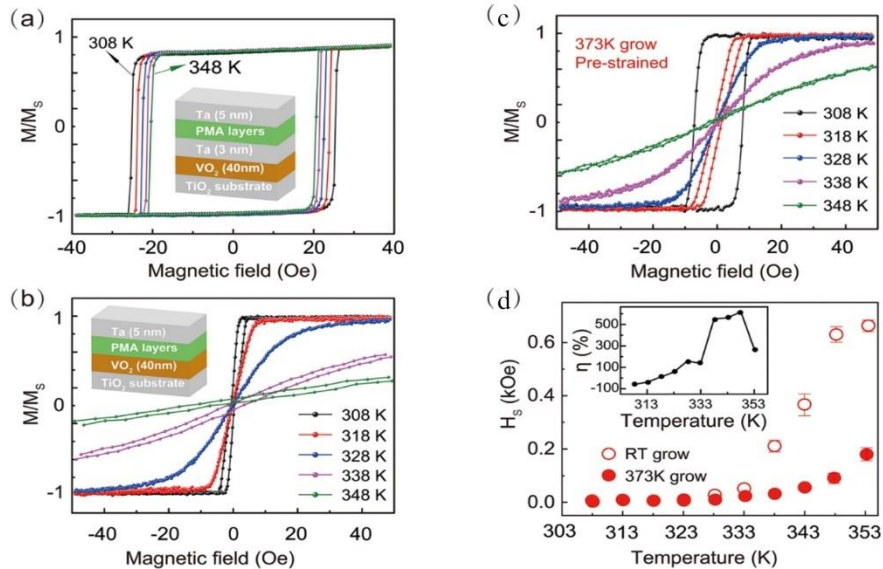


Figure V.4. Anisotropie magnétique de [Pt/Co]<sub>2</sub> avec une précontrainte induite par VO<sub>2</sub>. (a) Hystérésis d'aimantation OOP mesurées par MOKE à différentes températures de l'échantillon

de référence avec une couche tampon de Ta de 3 nm. (b) Hystérésis de l'échantillon sans couche tampon avec les couches PMA déposées à l'ambiante. (c) Hystérésis de l'échantillon sans couche tampon et précontraint avec les couches PMA déposées à 373 K. (d) Variations de  $H_s$  en fonction de la température des deux échantillons sans couche tampon de Ta, élaborés à l'ambiante et précontraint à 373 K. L'encart donne  $\eta$ , variation relative de  $H_s$  entre les deux échantillons.

L'effet de modulation peut être étudié davantage par comparaison entre l'échantillon ordinaire et un échantillon précontraint. L'échantillon ordinaire est élaboré avec les couches PMA déposées à la température ambiante. L'échantillon précontraint est préparé avec les couches PMA déposées à 373 K, condition dans laquelle  $VO_2$  est en phase rutile. Ainsi, au retour à l'ambiante après le dépôt,  $VO_2$  retournera en phase monoclinique avec un effet précontraint sur les couches PMA. Comme le montre la figure V.4(c), cet échantillon précontraint a une coercivité plus grande que l'échantillon ordinaire, résultant par un effet conjoint du processus de transition de phases rutile – monoclinique de  $VO_2$  entraînant une amélioration de la PMA et de la température de croissance plus élevée aboutissant à une meilleure qualité du film. Avec l'augmentation de la température, la boucle d'hystérésis de l'échantillon précontraint suit la même tendance que celle de l'échantillon ordinaire, mais avec un effet marqué sur l'anisotropie. La variation du  $H_s$  en fonction de la température est résumée dans la figure V.4(d). Pour l'échantillon ordinaire,  $H_s$  est d'environ 660 Oe jusqu'à 353 K, alors qu'il n'est que d'environ 170 Oe pour le précontraint. L'encart donne la différence relative entre ces deux échantillons, calculé comme  $\eta = (H_{s, RT} - H_{s, 373K}) / H_{s, 373K}$ , dont la valeur atteint 620%. Une différence significative entre ces deux échantillons peut être observée, lorsque la température est supérieure à 338 K, c'est-à-dire avec  $VO_2$  en phase rutile. Cela reflète le fait que si la tension interfaciale est libérée, l'effet de modulation serait fortement atténué. Etant donné que le champ de saturation joue un rôle important dans la commutation magnétique, cette grande modulabilité a un intérêt important pour le domaine de l'enregistrement magnétique.

#### V.1.4 Conclusion sur l'effet de la transition de phase de $VO_2$

La modulation réversible de l'anisotropie magnétique a été étudiée dans l'hétérostructure  $VO_2/[Pt/Co]_2$ , où la couche de  $VO_2$  est utilisée pour appliquer une tension interfaciale par sa transition de phases aux couches  $[Pt/Co]_2$ . La variation de la densité d'énergie dans l'anisotropie perpendiculaire et l'anisotropie interfaciale atteint  $3 \times 10^5$  erg/cm<sup>3</sup> et 0,85 erg/cm<sup>2</sup>, respectivement. Nous avons vérifié et établi l'effet de  $VO_2$ , par deux mesures. Tout d'abord, l'insertion d'une couche tampon de Ta annihile l'effet de  $VO_2$ , ce qui démontre que la couche de  $VO_2$  est à l'origine de la tension interfaciale subie par les couches PMA. Ensuite, un procédé consistant à faire croître les couches PMA sur  $VO_2$  en phase rutile à 373 K permet de pré-contraindre les couches PMA, ce

qui établit une fois de plus que la tension d'interface entre les couches VO<sub>2</sub> et PMA est responsable de la modulation observée. Le présent résultat devrait fournir des lignes directrices pour l'amélioration de l'efficacité de la modulation de la PMA et bénéficier au développement de la recherche en spintronique.

## V.2 Influence de couches diélectriques sur l'anisotropie de Pt/Co

L'application d'une tension dans des structures piézoélectriques / ferromagnétiques induit une déformation dans la couche piézoélectrique, qui est transférée à la couche magnétique. Cet effet de champ électrique peut induire une modification de l'anisotropie magnétique dans la couche ferromagnétique par l'effet magnétostrictif inverse [Lee2003, Lei2011]. Étant donné que la nucléation et la propagation DW magnétiques [Ravelosona2009] sont liées à l'anisotropie magnétique, les deux mécanismes peuvent être influencés par la déformation induite par le voltage [Lei2011]. Une autre voie pour affecter le mouvement DW est d'appliquer une tension de porte dans les structures métalliques / diélectriques ferromagnétiques. L'accumulation de charge et le champ électrique induit à l'interface métal ferromagnétique / diélectrique peuvent modifier l'anisotropie de l'interface dans le cas de quelques monocouches ferromagnétiques [Weissheit2007, Chiba2011]. En conséquence, l'accumulation de charge interfaciale induite par le voltage peut influencer le mouvement magnétique des parois, comme cela a été rapporté récemment dans des structures métalliques / diélectriques ferromagnétiques avec PMA telles que Pt/Co/AlO<sub>x</sub>, Pt/Co/HfO<sub>2</sub> et Pt/CoB/TaO<sub>x</sub> [Schellekens2012, Chiba2012].

Des travaux précédents ont montré qu'il était possible de contrôler le mouvement des parois de domaines des multicouches avec PMA par effet de champ électrique en utilisant une couche piézoélectrique. [Lei2011]. Les multicouches Co/Pt sont un système modèle pour étudier le mécanisme de la nucléation et du mouvement des parois de domaines, comme cela l'a été de manière intensive dans le passé [Ravelosona2009]. Dans ce système, la PMA résulte d'une forte anisotropie d'interface lors de l'utilisation de couche de Co ultra-mince (de l'ordre de 1 nm). Pour étudier le mouvement des parois de domaines dans de tels films, les multicouches Co/Pt doivent maintenir la PMA en combinaison avec la couche piézoélectrique ou diélectrique. Dans cette partie, nous allons traiter des propriétés magnétiques des structures métalliques piézoélectriques/ferromagnétiques et diélectriques, où une multicouche Co/Pt est utilisée comme

couche PMA. Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec Lin Weiwei et les résultats ont été publiés dans [Lin2013].

### V.2.1 Croissance et caractérisation des structures piézoélectriques-ferromagnétiques avec PMA

Pour le contrôle de la tension du mouvement des parois magnétiques dans les structures hybrides piézoélectriques / ferromagnétiques, l'utilisation de matériaux piézoélectriques efficaces est cruciale pour générer des contraintes élevées. Une approche prometteuse consiste à utiliser  $0.7(\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)-0.3(\text{PbTiO}_3)$  (PMN-PT), qui présente un coefficient piézoélectrique élevé [Lei2011]. Une température élevée et une pression  $\text{O}_2$  sont généralement nécessaires pour la croissance du film piézoélectrique épitaxié, avant la croissance de multicouches ferromagnétiques. Une couche PMN-PT d'une épaisseur de 120 nm a été déposée de façon épitaxiale sur un substrat  $\text{Si/SrTiO}_3(001)$  par dépôt laser pulsé, avec un laser excimère KrF de longueur d'onde 248 nm, une fluence de  $220 \text{ mJ/cm}^2$  à la sortie du laser et une fréquence de 2 Hz. La croissance se fait à  $620^\circ\text{C}$  sous  $4,1 \times 10^3 \text{ Pa}$  de  $\text{N}_2\text{O}$  et est suivie d'un refroidissement sous oxygène de  $4,8 \times 10^6 \text{ Pa}$ . Les structures cristallines des échantillons ont été étudiées par diffraction des rayons X.

La présence de la PMA dans les multicouches Co/Pt impliquant des couches de Co et de Pt ultra-minces est fortement influencée par la rugosité aux interfaces [Lin1991]. Il est important d'initier la croissance des multicouches Co/Pt sur une surface très plane. Des mesures de microscopie à force atomique (AFM) ont été effectuées en mode 'Tapping' avec une pointe  $\text{Si}_3\text{N}_4$ . L'image AFM (Fig.V.5(a)) indique que la rugosité du film PMN-PT est aussi élevée que 11 nm. Après recuit, la rugosité est réduite à 7,5 nm (Fig.V.5(b)). Afin de lisser davantage la surface, une couche tampon de Ta de 3 nm a été déposée sur la couche PMN-PT. Ensuite, un empilement de  $\text{Pt}(3\text{nm}) / \text{Co}(0,2\text{nm}) / [\text{Pt}(0,7\text{nm})/\text{Co}(0,2\text{nm})]_4 / \text{Pt}(3\text{nm})$  a été déposé à température ambiante (RT) par pulvérisation cathodique magnétron sous une pression d'Ar de  $5,8 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ . Les taux de dépôt pour Pt et Co étaient respectivement de 0,18 et 0,11 Å/s. La microscopie électronique à balayage (SEM) a été utilisée avec une tension de fonctionnement de 15 kV. Les images SEM indiquent que la surface est rugueuse pour la multicouche Co/Pt déposée sans couche tampon de Ta (Fig.V.6 (a)) et qu'une surface lisse a été obtenue en utilisant la couche de Ta de 3 nm (Fig.V.6(b)). Le résultat est conforme au fait qu'une fine couche de Ta favorise une texturation (111) de la couche de Pt [Lin1991], comme je l'ai montré dans le chapitre IV précédemment.

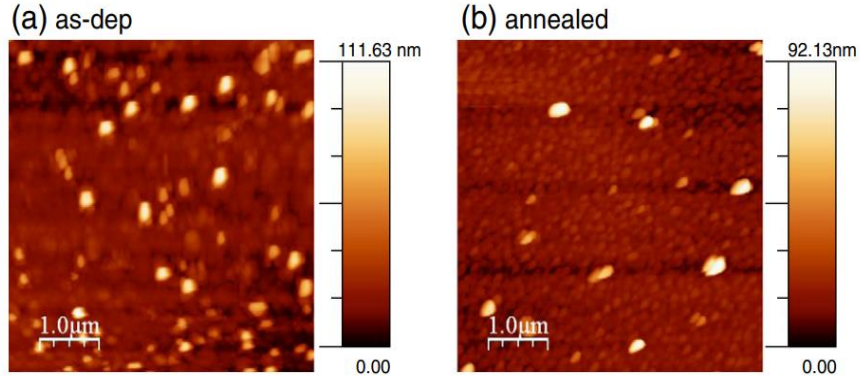


Figure V.5. Images AFM du PMN-PT de 120 nm sur Si/SrTiO<sub>3</sub>(001), avant (a) et après (b) recuit.

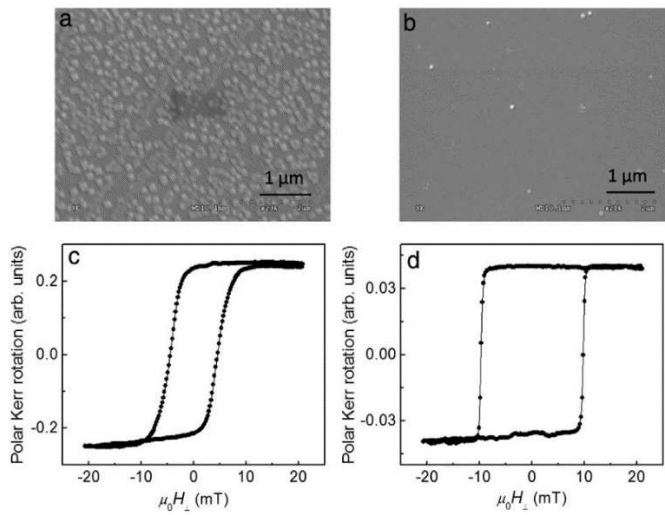


Figure V.6. Images SEM et cycles d'hystérésis OOP par MOKE polaire de Pt(3) / Co(0,2) / [Pt(0,7)/Co(0,2)]<sub>4</sub> / Pt(3) sur une couche PMN-PT, sans (a,c) et avec (b,d) une couche tampon de Ta de 3 nm. Les chiffres entre parenthèses indiquent les épaisseurs en nm.

Les cycles d'hystérésis magnétiques des multicouches Co/Pt ont été mesurés par effet Kerr polaire (PMOKE), avec le champ appliqué perpendiculaire au plan du film. Lorsque les multicouches Co/Pt sont déposées directement sur le PMN-PT, le renversement de l'aimantation n'est pas abrupt, reflétant une distribution de champs de nucléation en raison d'une grande densité de défauts dans les films (Fig.V.6(c)). Avec une couche tampon de Ta, le cycle d'hystérésis a une forme rectangulaire traduisant un mécanisme de renversement d'aimantation piloté par des champs de nucléation bien définis avec des mouvements DW rapides (Fig.V.6(d)), comme cela a été vérifié par ailleurs par microscopie Kerr. Il convient de mentionner que pour transférer la tension maximale de la couche PMN-PT à la couche Co/Pt, la couche tampon Ta/Pt doit être aussi mince que possible.

## V.2.2 Influence de la couche d'oxyde diélectrique sur la PMA de Pt/Co/Pt

Pour le contrôle par tension du mouvement des parois magnétiques dans les structures composites diélectriques/ferromagnétiques, le Pt/Co/Pt peut être déposé au-dessus ou sous une couche diélectrique. Différentes couches d'oxyde diélectrique telles que MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, HfO<sub>2</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et TiO<sub>2</sub> ont été préparées par dépôt par cathode magnétron, par évaporation par jets moléculaires ou par dépôt par couches atomiques (ALD). Comme décrit dans le chapitre IV, la présence de PMA dans la tri-couche Pt/Co/Pt est fortement influencée par la nature de la couche tampon. Dans cette étude, nous allons croquer une couche tampon diélectrique sous puis au-dessus de l'empilement ferromagnétique Pt/Co.

### V.2.2.1. Couche tampon diélectrique de Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

Le substrat Si(001) a été thermiquement oxydé pour former une couche épaisse de SiO<sub>2</sub> de 400 nm. Une couche Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> de 12 nm d'épaisseur a été déposée sur Si/SiO<sub>2</sub> à partir d'une cible Ta sous une pression de 1.4 Pa d'un mélange de gaz d'Ar et d'O<sub>2</sub>. Ensuite, la tri-couche Pt(1nm) / Co(0.5nm) / Pt(1nm), notée Pt(1) / Co(0.5) / Pt(1), a été déposée sous une pression d'Ar de 5,5×10<sup>-2</sup> Pa. La figure V.7 montre les cycles PMOKE de l'empilement SiO<sub>2</sub>(400) / Pt(1) / Co(0.5) / Pt(1) et SiO<sub>2</sub>(400) / Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(12) / Pt(1) / Co(0.5) / Pt(1), avec champ appliqué perpendiculaire. Le cycle d'hystérésis de SiO<sub>2</sub> / Pt / Co / Pt montre que la PMA de la multicouche sans buffer n'est pas parfaitement perpendiculaire. Le cycle d'hystérésis de SiO<sub>2</sub> / Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> / Pt / Co / Pt montre une rémanence de presque 100% et une coercivité plus importante par rapport au SiO<sub>2</sub>/Pt/Co/Pt, mais un champ de saturation plus faible. Le résultat indique que la PMA est de meilleure qualité pour la tri-couche Pt/Co/Pt au-dessus de la couche tampon de Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (Voir chapitre IV.2.2).

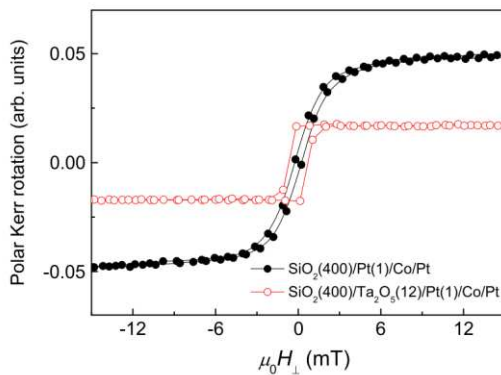


Figure V.7. Cycles d'hystérésis magnétique OOP par MOKE polaire sur SiO<sub>2</sub>(400) / Pt(1) / Co(0.5) / Pt (en noir) et SiO<sub>2</sub>(400) / Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(12) / Pt(1) / Co(0.5) / Pt (en rouge).

### V.2.2.2. Couches diélectriques de couverture

Pour la structure Pt/Co/Pt / diélectrique, la tri-couche Pt/Co(0,5 nm)/Pt a été d'abord déposée sur substrat Si/SiO<sub>2</sub>(400 nm). La couche de couverture d'oxyde diélectrique a été préparée en utilisant différentes méthodes de dépôt. Une première méthode consiste à évaporer le métal sur la tri-couche Pt/Co/Pt et ensuite de l'oxyder sous atmosphère d'O<sub>2</sub>. La figure V.8 montre l'influence de la couche de couverture de Ta de 1 nm sur la PMA de Pt/Co/Pt. Pour la structure Pt(5)/Co(0.5)/Pt(0.3), la PMA est perdue après la couverture de Ta. Cependant, lorsque l'épaisseur supérieure de Pt est augmentée jusqu'à 0,6 nm dans la structures Pt(5)/Co(0.5)/Pt(0.6)/Ta(1), nous observons la présence de la PMA et une coercivité réduite par rapport à celle de Pt(5)/Co(0.5)/Pt(0.6). La réduction de la coercivité peut être due à la diffusion de Ta dans la couche Pt, qui influence l'anisotropie de l'interface Co/Pt ou à la faible épaisseur de la couverture qui n'empêche pas l'oxydation partielle de la couche de Co par diffusion de l'oxygène à travers la couche de Ta.

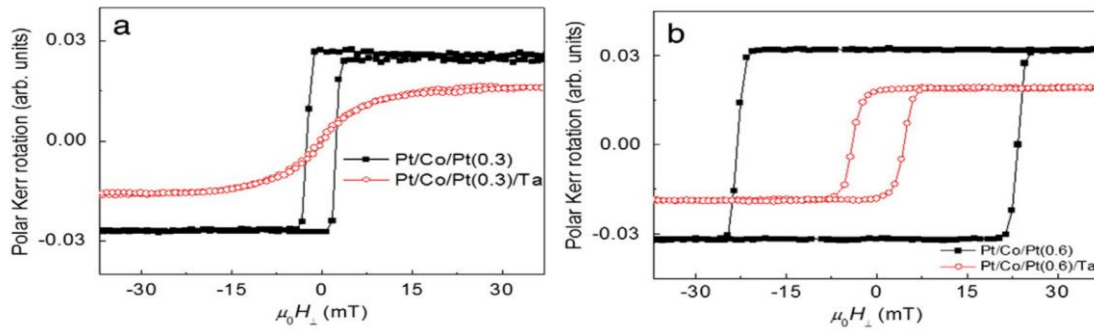


Figure V.8. Cycles d'hystérésis magnétique OOP par MOKE polaire de Pt(5)/Co(0.5)/Pt(t) sans (en noir) et avec (en rouge) une couche de couverture de Ta de 1 nm. (a)  $t = 0.3$  nm. (b)  $t = 0.6$  nm.

Afin d'obtenir un petit courant de fuite par application d'une tension, il faut quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur de couche diélectrique, ce qui est difficile à obtenir en oxydant la couche métallique. Nous avons donc fait croître une couche HfO<sub>2</sub> de 20 nm d'épaisseur par ALD sur la structure Pt (3.5) / Co (0.5) / Pt (1). Le processus ALD a été effectué à 100°C pendant 12 heures. La coercivité de la tri-couche Pt/Co/Pt est fortement réduite avec la couverture de HfO<sub>2</sub> (Fig.V.9(a)). Cela peut être causé par le long temps de recuit du processus ALD pouvant aboutir à une interdiffusion aux interfaces Co / Pt ou à la diffusion de Hf et O dans la couche supérieure Pt ou dans la couche de Co. Comme alternatives, nous avons préparé des couches d'oxyde de couverture en utilisant la pulvérisation cathodique. Avec MgO déposé par RF à partir d'une cible MgO sous la pression d'Ar de 0,14 Pa, la PMA de la tri-couche Pt/Co/Pt est perdue (Fig.V.9(b)). De même, une couverture de TiO<sub>2</sub> a été testée avec un dépôt à partir d'une cible de Ti sous atmosphère d'un mélange de gaz d'Ar et d'O<sub>2</sub> de 1,4 Pa en pression. La PMA de la tri-couche



Pt/Co/Pt est également perdue dans ce cas-là (Fig.V.9(b)). Une réduction ou disparition de la PMA de la tri-couche Pt/Co/Pt a été observée de façon similaire avec des couches de couvertures de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  (Fig.V.9(b)). Il semble que la présence d'un plasma durant le processus de pulvérisation de couches diélectriques peut impacter de manière négative la tri-couche Pt/Co/Pt et pourrait conduire à une possible oxydation de la couche de Co. Les résultats suggèrent qu'une croissance d'oxyde par évaporation sans plasma serait essentielle pour préserver la PMA de Pt/Co.

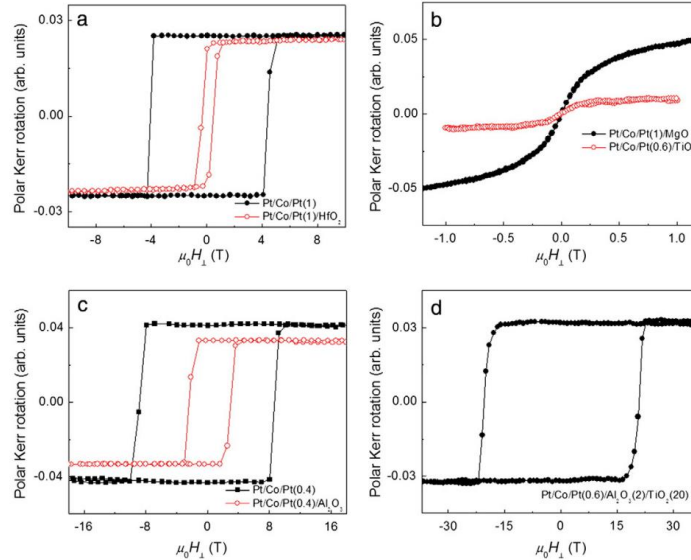


Figure V.9. Influence de couches de couverture diélectriques sur la PMA de la tri-couche Pt/Co/Pt. (a) Cycles PMOKE de Pt(3.5)/Co(0.5)/Pt(1) sans et avec une couche de couverture  $\text{HfO}_2(20)$ . (b) Cycles PMOKE de Pt(3.5)/Co(0.5)/Pt(1) recouverte d'une couche de  $\text{MgO}(2)$  et de Pt(5)/Co(0.5)/Pt(0.6) recouvert d'une couche  $\text{TiO}_2(20)$ . (c) Cycles PMOKE de Pt(5)/Co(0.5)/Pt(0.4) sans et avec une couche de couverture de  $\text{Al}_2\text{O}_3(50)$ . (d) Cycle PMOKE de Pt(5)/Co(0.5)/Pt(0.6)/ $\text{Al}_2\text{O}_3(2)$ / $\text{TiO}_2(20)$ .

Considérant les résultats obtenus sur les couches diélectriques, nous avons adopté un compromis sur les séquences de croissance par pulvérisation cathodique, afin de préserver la PMA de la tri-couche Pt/Co/Pt d'une part et d'avoir une couche diélectrique à grande constante diélectrique d'autre part (*e.g.*  $\text{HfO}_2$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  ou  $\text{TiO}_2$ ). Il s'agit d'élaborer une couche fine (2 nm) de couverture de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  suivie d'une couche épaisse de  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  ou  $\text{TiO}_2$ . L'empilement final Pt(5) / Co(0.5) / Pt(0.6) /  $\text{Al}_2\text{O}_3(2)$  /  $\text{TiO}_2(20)$  montre un cycle d'hystérésis de forme bien rectangulaire avec une grande coercivité (Fig.V.9(d)).

### V.2.3 Conclusion sur l'influence de couches d'oxyde diélectrique

Nous avons élaboré des hétérostructures piézoélectriques / ferromagnétiques et diélectriques / ferromagnétiques avec PMA et étudié leurs propriétés magnétiques. Nos résultats

montrent que la PMA de Pt/Co est fortement influencée par la présence de la couche d'oxyde. Il est nécessaire de minimiser la rugosité de surface de l'oxyde et d'utiliser des techniques de croissance sans plasma ainsi que des recuits pour préserver la PMA de Pt/Co.

### V.3 Modification de l'anisotropie par répétition de Pt/Co

#### V.3.1 Anisotropie et domaines magnétiques des hétérostructures Ta / Pt / Co / [Pt/Co]<sub>n</sub> / Pt

De nombreuses recherches exploitent également la répétition du système Pt/Co pour modifier l'anisotropie, *i.e.* [Pt/Co]<sub>n</sub> où n est le nombre de répétitions [Zhang1993, Barman2007]. Il s'agit de savoir si la PMA est renforcée ou diminuée en subdivisant Co en sous-couches et en multipliant le nombre de répétitions. Autrement dit, la PMA sera renforcée, si la subdivision de Co et la répétition de Pt/Co ont un effet bénéfique cumulatif vis-à-vis de l'anisotropie interfaciale Pt/Co. D'un autre côté, si le procédé accroît la génération de défauts et désordre, ce sera au détriment de la PMA.

Dans un premier temps, j'ai exploré la PMA de multicouches [Pt/Co]<sub>n</sub> en variant n et l'épaisseur d'une sous-couche de Co (Fig. V.10). Les structures Ta(3) / Pt(3) / Co(x) / [Pt(0.7)/Co(x)]<sub>n</sub> / Pt(3), notées Coxny avec x = 0.2, 0.3 et 0.4 et y = 2, 3 et 4, possèdent toutes une PMA avec des cycles d'hystérésis de forme assez rectangulaire. En diminuant l'épaisseur d'une sous-couche de Co jusqu'à 0.2 nm avec un même nombre de répétitions de Pt/Co, on note une réduction drastique du champ coercitif (Fig.V.10(a)). L'augmentation du nombre de répétitions avec la même épaisseur d'une sous-couche de Co affecte peu la coercivité, mais la forme des cycles devient plus arrondie (Fig.V.10(b,c)). Le fait que le renversement de l'aimantation devient plus progressif avec l'augmentation du nombre de répétitions est vraisemblablement lié à l'interaction dipolaire entre les sous-couches de Co.

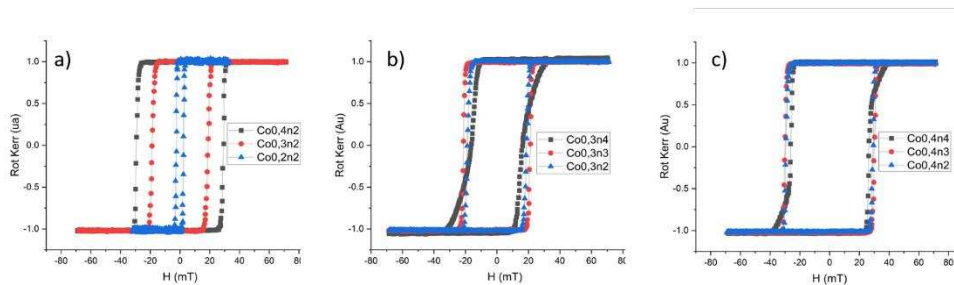


Figure V.10. Cycles d'hystérésis MOKE hors plan des hétérostructures Ta(3)/Pt(3)/Co(x)/[Pt(0.7)/Co(x)]<sub>n</sub>/Pt(3), notées Coxny avec x = 0.2, 0.3 et 0.4 et y = 2, 3 et 4. a) Cycles de Co0.2n2, Co0.3n2 et Co0.4n2. b) Cycles de Co0.3n2, Co0.3n3 et Co0.3n4. c) Cycles de Co0.4n2, Co0.4n3 et Co0.4n4.

Afin de d'avoir une vision plus détaillée du renversement de l'aimantation, la microscopie Kerr a été utilisée. Pour la structure Co0.3n3, Ta(3)/Pt(3)/Co(0.3)/[Pt(0.7)/Co(x)]<sub>3</sub>/Pt(3), les points caractéristiques, de 1 à 10, du cycle d'hystérésis MOKE (Fig.V.11(a)) ont servi de points de départ pour les images Kerr (Fig.V.11(b-k)). A partir de la saturation et en suivant l'ordre des points caractéristiques, une fréquence de mesure de 0,3 Hz du champ de -12 à -26 et puis à +38 mT a été appliquée avant d'acquérir les images Kerr. Les domaines magnétiques sont visualisés grâce au contraste de l'image. Le pourcentage des zones noires fournit la proportion de l'aimantation inverse par rapport à l'état de saturation initial. On remarque que la proportion de l'aimantation inverse relevée suit bien le cycle d'hystérésis MOKE (Fig.V.11(a)), ce qui indique que les images Kerr dans les conditions d'acquisition utilisées reflètent bien l'état quasi-statique du processus du renversement de l'aimantation. Les images Kerr nous révèlent également la nucléation et la forme des domaines. Ici, de nombreux centres de nucléation apparaissent simultanément (Fig.V.11(c)) et les domaines s'agrandissent avec des formes irrégulières au lieu d'une forme ronde (Fig.V.11(c)). Le processus inverse (Fig.V.11(d-k)) révèle le même phénomène. Par conséquent, une multicouche semble générer de nombreux défauts et piègeages pour la propagation de domaines en comparaison avec une couche simple.

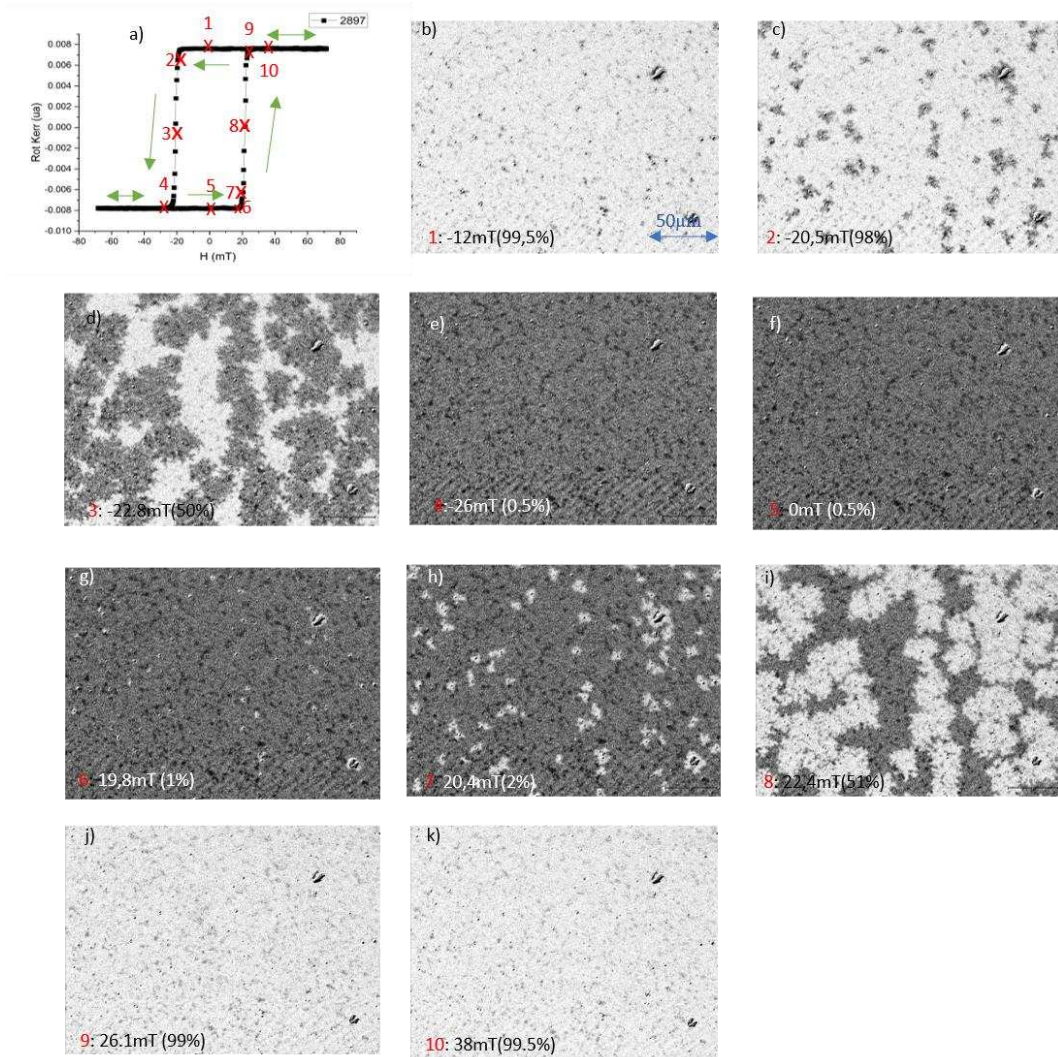


Figure V.11. Domaines magnétiques par microscopie Kerr dans la structure  $\text{Co}_{0.3n3}$ , ou  $\text{Ta}(3) / \text{Pt}(3) / \text{Co}(0.3) / [\text{Pt}(0.7) / \text{Co}(x)]_3 / \text{Pt}(3)$ . a) Cycle d'hystérésis MOKE. Les points rouges de 1 à 10 indiquent les valeurs du champ utilisées pour la microscopie Kerr et les proportions des domaines inverses relevées sur les images Kerr. Les flèches vertes indiquent l'ordre des mesures. b-k) Images Kerr dans l'ordre des mesures (numérotés en rouge de 1 à 10). La durée de l'impulsion est de 100 ms, la valeur du champ indiquée en bas de l'image et le pourcentage des domaines inverses (zones noires) donné entre parenthèses.

Une analyse similaire par microscopie Kerr a été menée sur une structure  $\text{Ta}(1) / \text{Pt}(3) / \text{Co}(0.3) / [\text{Pt}(0.7) / \text{Co}(x)]_4 / \text{Pt}(3)$  (Fig.V.12). Nous saturons la multicouche avec une impulsion d'amplitude supérieure à 50 mT et de durée 5 s (Fig.V.12(a)) et puis appliquons des impulsions d'amplitudes négatives pour étudier le renversement de l'aimantation (Fig.V.12(b-e) et (g-i)). Avec des amplitudes de -5 à -17 mT, il n'y a pas de nucléation de domaines visibles, ce qui est cohérent avec l'hystérésis de l'échantillon mesuré par VSM qui donne un champ coercitif de 20 mT (Fig.V.12(f)). A partir de -19 mT, il y a plusieurs nucléations de formes irrégulières (Fig.V.12(b)). La propagation des domaines est provoquée par des impulsions répétées de 5 s à -19 mT

(Fig. V.12(c-e)), jusqu'à ce que la majorité de l'aimantation soit retournée. Cependant, un réseau de piègeages très dense est persistant et l'image Kerr même après application d'une impulsion de -19 mT durant 100 s reste sensiblement similaire à celle de la figure V.12(e). Si on applique une impulsion de 50 mT, presque tout le film se retourne de nouveau par propagation de domaines à partir des centres de piègeages. Mais il peut rester des piègeages mais trop petits pour être visibles en magnéto-optique. Pour élucider ce point, j'applique un champ positif de 50 mT et puis un champ négatif de -17 mT pendant 5 s, ce qui permet de révéler les points réfractaires ayant résisté au champ positif et servant de point de départ pour la propagation de domaines inverses (Fig. V.12(g)). En effet, à côté des zones larges (zones noires) où l'aimantation est renversée par l'impulsion de -17 mT, des points réfractaires (points noirs) sont présents partout dans tout le film. Le nombre de points réfractaires diminue au fur et à mesure que l'on augmente l'amplitude du champ (Fig. V.12(h-i)). Les images Kerr confirment le fait que la nucléation a lieu en de nombreux points à partir desquels la propagation se fait. Ainsi, une multitude de piègeage conduit à des domaines de formes irrégulières et avec des trous à l'intérieur. Avec 25 mT, on retourne presque toute l'aimantation, mais il reste une très forte densité de points réfractaires. Il faut aller jusqu'à 60 mT pour que tout soit vraiment bien saturé. En moyenne, l'imagerie donne un champ coercitif de l'ordre de 20 mT, conforme au cycle d'hystérésis par VSM.

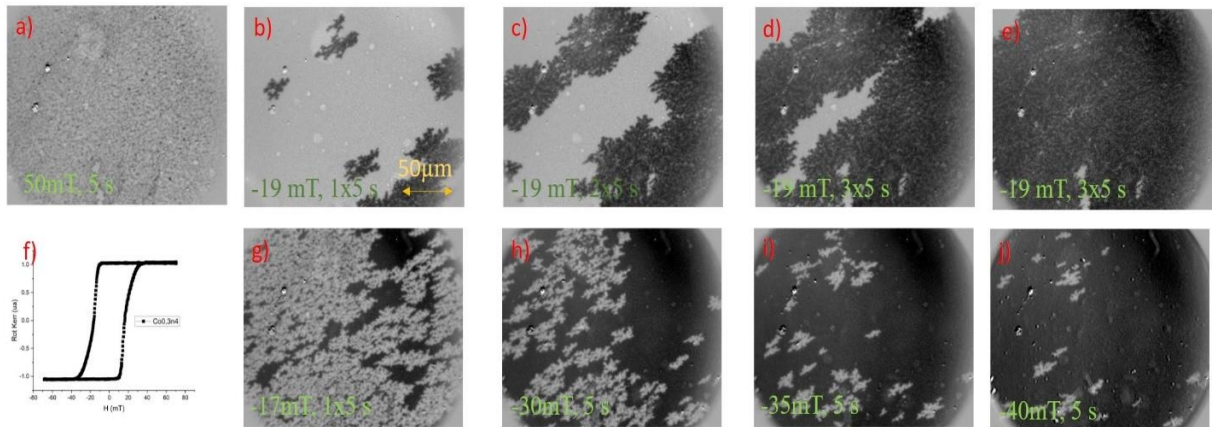


Figure V.12. Domaines magnétiques par microscopie Kerr de la structure Ta(1) / Pt(3) / Co(0.3) / [Pt(0.7) / Co(x)]<sub>4</sub> / Pt(3). a) Saturation obtenue avec une impulsion de 50 mT et de 5 s en durée. b)-e) Après application de 1, 2, 3 et 4 impulsions de -19 mT et de durée 5 s, à partir de la saturation, respectivement. f) Cycle d'hystérésis hors plan mesuré par VSM. g)-j) Après applications successives d'impulsions de -17, -30, -35 et -40 mT à partir de la saturation, respectivement.

### V.3.2 Conclusion sur la modification de l'anisotropie par répétition de Pt/Co

La PMA est préservée dans les multicouches Pt/Co étudiées. La subdivision de Co en sous-couches ultraminces (jusqu'à 0.2 nm) permet de réduire le champ coercitif. Le nombre de répétition de Pt/Co agit principalement sur la forme du cycle d'hystérésis qui dévie de la forme rectangulaire et peut être interprétée comme l'interaction dipolaire croissante entre sous-couches. Une étude poussée par microscopie Kerr montre qu'il y a une multitude de défauts et de centres de piégeages conduisant à des domaines de formes irréguliers avec des propagations très inhomogènes. Il est dans ce cas très difficile de mesurer la vitesse de propagation et d'examiner s'il y a présence de certains effets tels que la DMI.

## V.4 Retournement de l'aimantation induit par accumulation de charges

Le contrôle de l'aimantation à l'aide d'un champ électrique est une voie en plein développement, aussi bien du point de vue de la physique fondamentale que de celui des applications potentielles [Maruyama2009, Chung2008, Lin2011]. Il a été montré que l'aimantation et l'anisotropie pouvaient être modifiées également par l'accumulation de charge induite par un champ électrique à une interface métal ferromagnétique/isolant [Borisov2005, Endo2010]. En outre, des travaux théoriques ont montré que le champ électrique pouvait aussi avoir une influence sur l'anisotropie magnétocristalline [TsujiKawa2009]. Je présente ici une étude préliminaire du renversement de l'aimantation dans une structure Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, du fait d'une accumulation de charges à l'interface Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [Lin2013]. Nous avons choisi Pt/Co/Pt pour son anisotropie perpendiculaire, qui résulte principalement de l'interaction spin-orbite. Le film de Pt(5nm)/Co(0.5nm)/Pt(0.5nm) a été élaboré par pulvérisation et recouvert *in situ* d'une couche isolante de 50 nm d'épaisseur de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Fig.V.13(a)). L'ensemble a été recouvert en plus par une couche de 100 nm de In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Sn (ITO), composé à la fois conducteur et transparent (conductivité de l'ITO utilisé :  $7 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ) qui sert de l'électrode supérieure. Grâce à la transparence de l'électrode, nous avons pu vérifier les propriétés du film de Pt/Co/Pt par effet Kerr qui présente une anisotropie perpendiculaire comme en témoigne le cycle polaire caractéristique carré (Fig.V.13(c)).

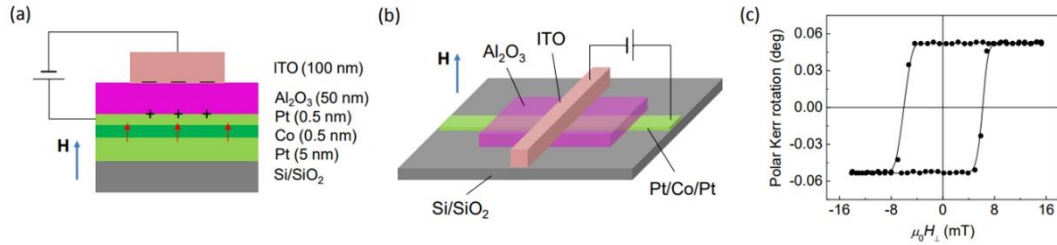


Figure V.13. Hétérostructure Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ITO. (a,b) Schémas de l'hétérostructure. (c) Cycle d'hystérésis de la couche Pt/Co/Pt obtenu *in situ* par effet Kerr polaire, avant le dépôt de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Pour étudier l'effet du champ électrique et de l'accumulation de charge, nous avons utilisé l'imagerie Kerr polaire rendue possible grâce au caractère transparent de l'électrode d'ITO. La tension est appliquée entre l'électrode d'ITO et le film Pt/Co/Pt, de telle sorte qu'une accumulation de charge se produise au niveau de la couche supérieure de Pt. On notera que la couche supérieure de Pt est très fine (0.5 nm) pour que l'effet d'accumulation de charges ne soit pas totalement écranté au niveau de la couche de Co. Le retournement a été testé en répétant plusieurs fois la même procédure (Fig.V.14) : saturation de l'aimantation avec -20 mT, puis une impulsion de +6 mT durant 20 s. Pour une valeur du champ électrique donnée, nous avons vérifié que l'expérience était reproductible. Pour un potentiel appliqué de +1 V, il apparaît un centre de nucléation de l'aimantation inverse qui est inexistant pour les potentiels de 0 et -1 V. Cela suggère une possible réduction de l'anisotropie magnétique en présence d'une accumulation de charges positives à l'interface Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

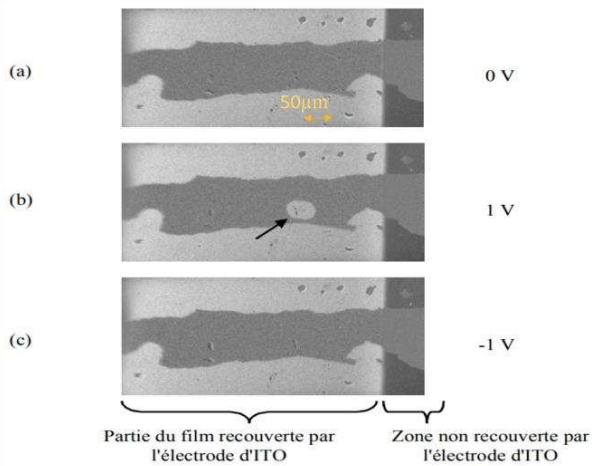


Figure V.14. Images Kerr polaire de la structure Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ITO après une impulsion magnétique de 6 mT durant 20 s en présence d'un potentiel de 0, 1 et -1 V entre l'ITO et le film Pt/Co/Pt, dans (a), (b) et (c) respectivement. L'ITO recouvre la majeure partie du film visualisée ici à gauche de l'image. La zone grise horizontale correspond à la bande du film Pt/Co/Pt avec l'aimantation saturée par -20 mT et pointée vers le bas. La région blanche dans (b) pointée par une flèche indique une zone où l'aimantation est retournée par une impulsion magnétique en présence d'un potentiel de 1 V entre l'électrode et le film, contrairement aux cas (a) et (c).

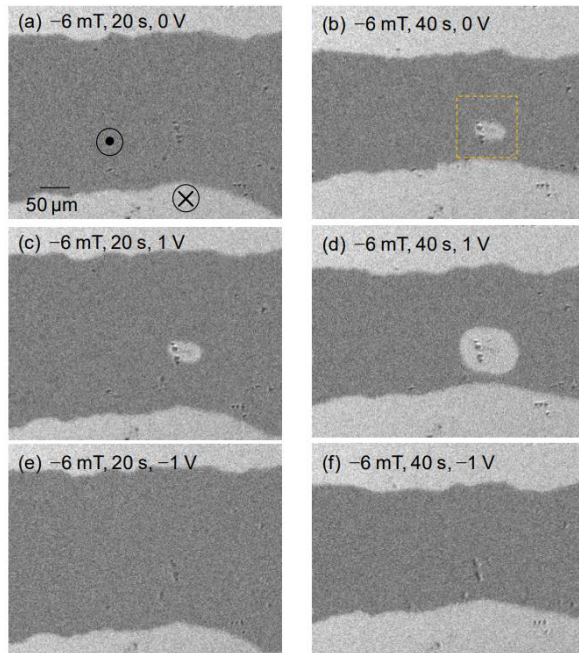


Figure V.15. Images Kerr polaire de la structure Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ITO en présence d'un potentiel de 0, 1 et -1 V entre l'ITO et le film Pt/Co/Pt, dans (a,b), (c,d) et (e,f) respectivement, après des impulsions magnétiques de -6 mT et de durée 20 et 40 s. Les étiquettes pointée et croisée indiquent le sens de l'aimantation pointant vers la surface (partie grise) et dans le film (partie blanche), respectivement. Le carré en pointillés souligne la zone où l'aimantation est fortement influencé par la tension appliquée.

En résumé, nous avons montré que la nucléation et la propagation de domaines magnétique peuvent être fortement influencées par l'accumulation de charges dans une couche métallique ultramince non magnétiques. Cela suggère que la modification de l'occupation des électrons 5d dans la couche ultramince de Pt impacte directement les propriétés magnétiques de Co en raison de l'hybridation 3d-5d. Nos résultats indiquent également que l'effet d'accumulation de charge est inhomogène et localisé sur le film. L'interprétation des mesures et la corrélation avec le comportement magnétique général par magnétométrie Kerr ou VSM doivent donc être faites avec beaucoup de soin pour le moment. La mesure locale de l'événement de commutation magnétique unique est une condition préalable pour aller plus et pour comprendre pleinement l'effet du champ électrique sur le comportement magnétique. Enfin, nos résultats ouvrent une voie et la perspective d'exploiter le champ électrique pour la commutation magnétique, dans des mémoires non volatiles par exemple ou dans des dispositifs logiques basés sur les domaines magnétiques.

## V.5 Conclusion sur le contrôle de l'anisotropie magnétique

Nous avons démontré qu'il est possible de conserver la PMA de Pt/Co dans diverses hétérostructures et de contrôler et modifier l'anisotropie magnétique de Pt/Co par différents procédés. L'utilisation d'une couche tampon de VO<sub>2</sub> permet de moduler la PMA de Pt/Co de façon



réversible, à l'aide de la transition de phases de VO<sub>2</sub> et du couplage interfacial entre VO<sub>2</sub> et Pt/Co. Nous avons également montré que la PMA de Pt/Co est fortement influencée, lorsque Pt/Co est en contact avec une couche d'oxyde diélectrique ou piézoélectrique, couche d'oxyde en tant que couche tampon ou couche de couverture. Dans ce cas, il est nécessaire de minimiser la rugosité de surface de l'oxyde et préférable d'utiliser des techniques de croissance sans plasma, ainsi que des recuits, pour améliorer la PMA de Pt/Co. La PMA est préservée dans les multicouches [Pt/Co]<sub>n</sub>. Des sous-couches fines de Co permettent de réduire la coercivité. Le nombre de répétitions génère de nombreux défauts et centres de piégeage pour les domaines magnétiques. Nous avons mené une étude préliminaire sur l'effet d'accumulation de charges sur le renversement de l'aimantation dans une structure Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ITO et trouvé une possible réduction de l'anisotropie magnétique perpendiculaire de Pt/Co/Pt en présence de charges électriques. Les structures et procédés étudiés ici constituent divers leviers pour agir sur l'anisotropie magnétique, le renversement de l'aimantation et la propagation de domaines magnétiques dans des structures à base de Pt/Co.

## VI. Couplage d'échange dans Pt/Co/métal et Pt/Co/oxyde

Les structures à base de Pt/Co sont amenées à être intégrées dans des systèmes complexes où la couche supérieure est très souvent différente du platine. Il est important d'étudier cette couche de couverture qui, comme nous avons vu dans Chapitre V.3.2, impacte le couplage d'échange de Co. Actuellement, les structures à trois matériaux Pt/Co/HM/Pt impliquant un métal lourd (HM) et avec une PMA interfaciale sont intensivement étudiées pour leurs effets spintroniques émergents, tels que la commutation par effet de torque spin-orbite (SOT) [Woo2014, Huang2015] et le mouvement des parois de domaine [Miron2009, Haazen2013]. Un métal autre que Pt comme couche de couverture génère une dissymétrie des interfaces pour la couche de Co et renforce certains effets interfaciaux. Par exemple, la structure Pt/Co/Ta peut présenter une DMI importante [Moreau2016], qui est essentielle dans le mouvement des parois de domaine induit par le courant basé sur SOT [Ryu2013].

Dans ce chapitre, j'examine les effets de différents matériaux brisant la symétrie Pt/Co/Pt en intercalant une couche en métal lourd entre la couche de Co et la couche de couverture de Pt. Je présenterai également des résultats sur la modification de couplage d'échange entre Co et une couche d'oxyde.

### VI.1 Couverture avec des métaux lourds et légers

#### VI.1.1 Impact sur l'anisotropie magnétique

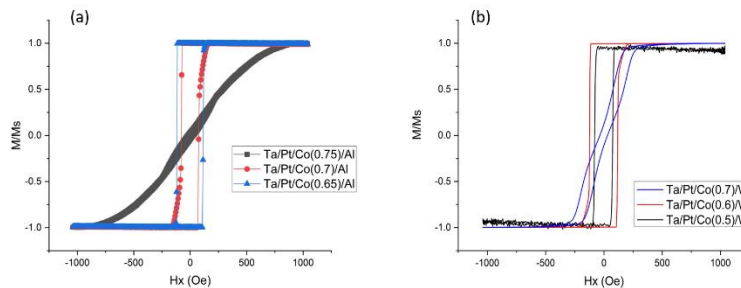


Figure VI.1. Cycles d'hystérésis MOKE polaire de Ta(2)/Pt(3)/Co(x)/Al(2)/Pt(3) avec  $x = 0.65, 0.7$  et  $0.75$  nm (a) et Ta(2)/Pt(3)/Co(x)/W(2)/Pt(3) avec  $x = 0.5, 0.6$  et  $0.7$  nm (b).

Les résultats sur l'anisotropie de l'empilement de base Pt/Co/Pt peuvent être résumés comme suit. Une excellente PMA est obtenue pour une épaisseur de Co de 0,6 à 1,6 nm. En-deçà,

l'empilement a un comportement paramagnétique. Au-delà et à partir de 1.7 nm de Co, l'axe facile d'aimantation commence à tourner jusqu'à être dans le plan dès 1.8 nm de Co. Ici, nous brisons la symétrie autour de la couche de Co en insérant un métal en couverture dans une structure Ta/Pt/Co/Cap/Pt. Les empilements suivants ont été élaborés par pulvérisation à cathode magnétique à l'Université Beihang (Beijing, Chine) : Ta(2) / Pt(3) / Co(x) / Cap(2) / Pt(3) avec  $0,4 < x < 2$  nm et Cap = W, Ta, Pd, Ru et Al. L'atome léger Al a été utilisé pour comparaison avec les cas des atomes lourds. La plage pour l'obtention de la PMA en fonction de l'épaisseur de Co est plus restreinte avec l'insertion d'une couche d'un autre matériau entre la couche de Co et de Pt par rapport au cas de l'empilement de base (Fig.VI.1). Pour une couche de couverture de W, la PMA est fortement dégradée avec une épaisseur de Co supérieure à 0,7 nm, tandis que la PMA est persistante avec une couche de couverture de Al. Par contre, la frontière entre le superparamagnétisme et la PMA augmente à 0.55 nm de Co en cas de couverture en Al.

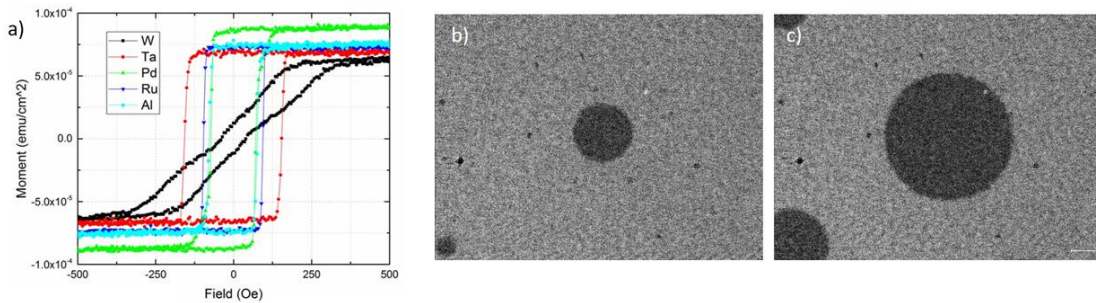


Figure VI.2. Empilements Ta(3)/Pt(3)/Co(0.7)/Cap(2)/Pt(3) avec Cap = W, Ta, Pd, Ru et Al. a) Cycles d'hystérésis VSM hors plan. Nucléation (b) et propagation (c) de domaines dans l'empilement Ta(3)/Pt(3)/Co(1)/Ru(1)/Pt(3) par imagerie Kerr polaire, après une et dix impulsions de 15 mT et de 10 ms en durée, respectivement.

Pour une épaisseur de Co de 0,7 nm donnée, les empilements Ta/Pt/Co/Cap/Pt avec une couche de Cap de 2 nm en W, Ta, Pd, Ru et Al possèdent tous une PMA (Fig.VI.2(a)). L'effet d'hybridation 3d/5d entre le cobalt et un atome lourd est essentiel pour l'obtention de la PMA. Le fait qu'avec W, Ta, Pd et Ru, la PMA est préservée montre un couplage entre ces métaux et Co, couplage dont nous allons approfondir l'étude. Avec une couverture de Ru sur Co, la microscopie Kerr montre une nucléation de domaines qui peut être déclenchée à bas champ (15 mT en 10 ms) avec des domaines de forme circulaire et une propagation de domaines homogène (Fig.VI.2(b,c)). On remarque cependant que le moment de saturation varie d'un échantillon à l'autre, ce qui indique l'existence de l'équivalent d'une fine couche morte vis-à-vis de l'aimantation à saturation. La proportion de la couche morte dépend du matériau Cap utilisé mais également des conditions de croissance (vide, distance cible-substrat, vitesse de dépôt).

La couche de couverture impacte non seulement la forme des domaines, mais également leur propagation. La figure VI.3 montre la vitesse de propagation de parois de domaines dans deux empilements Pt/Co(0.7)/Pt et Pt/Co(0.8)/Al en fonction du champ. Des impulsions de champ magnétique de 2 jusqu'à 35 mT ont été appliquées avec des durées de plus en plus courtes variant de 1500 s à 5  $\mu$ s. Le régime de fluage est clairement observé dans le cas de Pt/Co(0.7)/Pt avec un champ de seuil vers 20 mT, tandis que la vitesse de propagation est de deux ordres de grandeur plus faibles dans le cas de Pt/Co(0.8)/Al par rapport au cas de Pt/Co(0.7)/Pt.

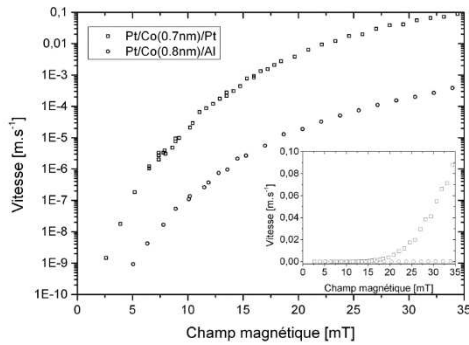


Figure VI.3. Vitesses de propagation de parois de domaines dans des empilements Pt/Co(0.7)/Pt et Pt/Co(0.8)/Al en fonction du champ perpendiculaire, mesurées par microscopie Kerr polaire.

### VI.1.2 Impact sur la dynamique de l'aimantation

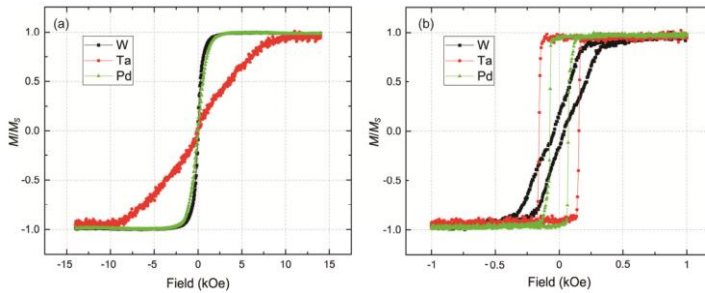


Figure VI.4. Cycles d'hystérèse magnétiques dans le plan (a) et hors plan (b) des empilements Ta(2) / Pt(3) / Co(0,8) / Mx(2) / Pt(3) avec Mx = W, Ta et Pd.

Tableau VI. 1. Caractéristiques magnétiques des empilements Ta(2)/Pt(3)/Co(0,8)/Mx(2)/Pt(3) avec Mx = W, Ta et Pd, déterminées des cycles d'hystérésis et de la dynamique de l'aimantation.

$H_c$ , champ coercitif ;  $H_k$ , champ d'anisotropie correspondant au champ pour saturer 90% de l'aimantation suivant l'axe difficile ;  $M_s$ , densité d'aimantation à saturation ;  $t_{dead} = t_{Co} (1 - M_s/M_{s,bulk})$ , épaisseur de la couche morte ;  $t_{eff} = t_{Co} - t_{dead}$ , épaisseur effective ;  $M_s \times t_{eff}$ , densité surfacique d'aimantation à saturation effective ;  $K_{eff} = \frac{1}{2} H_k M_s$ , constante d'anisotropie effective ;  $K_i \approx t_{eff} (K_{eff} + 2\pi M_s)$ , constante d'anisotropie d'interface ;  $K_{eff} \times t_{eff}$ , indice de la PMA interfaciale ;  $\alpha_{eff}$ , facteur d'amortissement effectif.

| Capping materials | $H_c$<br>Oe | $M_s \times t_{eff}$<br>emu/cm <sup>2</sup> | $H_k$<br>Oe | $t_{dead}$<br>nm | $t_{eff}$<br>nm | $M_s$<br>emu/cm <sup>3</sup> | $K_{eff} \times t_{eff}$<br>erg/cm <sup>2</sup> | $K_i$<br>erg/cm <sup>2</sup> | $K_{eff}$<br>erg/cm <sup>3</sup> | $\alpha_{eff}$ |
|-------------------|-------------|---|-------------|------------------|-----------------|------------------------------|---|------------------------------|----------------------------------|----------------|
| W                 | 38          | $0.91 \times 10^{-4}$                       | 1120        | 0.37             | 0.43            | 2090                         | 0.05  | 0.52                         | $1.2 \times 10^6$                | 0.04           |
| Ta                | 155         | $0.76 \times 10^{-4}$                       | 8100        | 0.43             | 0.37            | 2034                         | 0.28  | 0.59                         | $7.4 \times 10^6$                | 0.058          |
| Pd                | 72          | $1.23 \times 10^{-4}$                       | 1520        | 0.16             | 0.64            | 1926                         | 0.09  | 0.55                         | $1.5 \times 10^6$                | 0.05           |

Un des paramètres importants dans la dynamique de l'aimantation est le facteur d'amortissement. Nous avons étudié cet effet consécutif à une couche de couverture en métal lourd [Zhang2017]. La structure des échantillons est de Ta(2)/Pt(3)/Co(0.7)/Mx(2)/Pt(3) avec Mx = W, Ta et Pd. Les films ont été étudiés par magnétométrie à gradient de force magnétique (AGFM) ou VSM et les caractéristiques magnétiques extraites (Fig.VI.4 et Tab.VI.1). Le champ de saturation  $H_s$  hors plan est inférieur à 200 Oe avec Ta et Pd en couverture et de l'ordre du double avec W. Le champ d'anisotropie  $H_k$  est défini comme le champ nécessaire pour saturer 90% de l'aimantation suivant l'axe difficile dans le plan. Il est de 1,1 et 1,5 kOe pour W et Pd et beaucoup plus élevé à 8.1 kOe avec Ta. La dépendance de  $M_s$  sur l'épaisseur de Co dans nos échantillons indique l'existence d'une couche morte magnétiquement d'épaisseur  $t_{dead}$ . Dans le cas présent avec une couche ultramince de Co (0.8 nm), cette couche morte représente presque la moitié de l'épaisseur totale avec W et Ta en couverture et 20% avec Pd. On peut ainsi définir une épaisseur effective pour l'aimantation  $t_{eff} = t_{Co} - t_{dead}$ . La constante d'anisotropie effective est donnée par  $K_{eff} = \frac{1}{2} H_k M_s$  [Yakushiji2016]. Pour caractériser la PMA, un indice de la PMA interfaciale a été introduit comme le produit  $K_{eff} \times t_{eff}$  [Cheng2020]. L'indice PMA interfaciale a une valeur de 0,28 erg/cm<sup>2</sup> avec Ta, ce qui est beaucoup plus grand que 0,09 et 0,05 erg/cm<sup>2</sup> avec Pd et W, respectivement. Par conséquent, en plus de l'interface inférieure Pt/Co qui est identique pour les trois types d'empilements, l'interface supérieure Co/Ta contribue plus à la PMA que celles Co/W et Co/Pd.

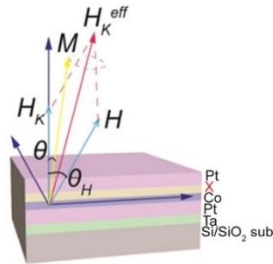


Figure VI.5. Disposition pour la mesure Tr-MOKE des empilements Ta/Pt/Co/Mx/Pt (Mx = W, Ta et Pd) :  $H_k$ , axe d'anisotropie perpendiculaire ;  $H_k^{eff}$ , axe d'anisotropie effective ou direction d'équilibre pour l'aimantation ; H et  $\theta_H$ , champ appliqué et son angle par rapport à l'axe vertical ; M et  $\theta$ , aimantation et son angle par rapport à l'axe vertical.

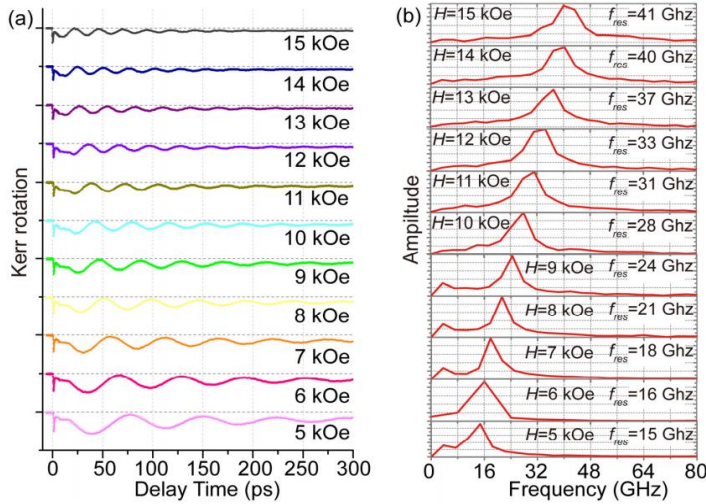
La dynamique de l'aimantation des empilements est analysée par MOKE résolu en temps (Tr-MOKE) en mode pompe-sonde avec une fréquence de répétition de 1 kHz. Un pulse laser pompe sub-picoseconde de longueur d'onde de 800 nm et de fluence de 4 mJ/cm<sup>2</sup> est envoyé à l'incidence normale sur l'échantillon. La sonde est dirigée presque normalement à la surface de l'échantillon et permet de mesurer la composante polaire de l'aimantation. L'angle  $\theta_H$  entre le champ appliqué H et la normale du film a été réglé à 71° (Fig.VI.5). Dans un protocole où l'aimantation est saturée au préalable verticalement par un champ perpendiculaire et soumis ensuite à un champ H à 71° de la normale du film, l'aimantation trouve le nouvel équilibre à une direction intermédiaire entre l'axe d'anisotropie vertical  $H_k$  et la direction du champ H. La direction

d'équilibre est appelée également axe d'anisotropie effectif  $H_k^{\text{eff}}$ . L'énergie thermique apportée par le pulse laser pompe déstabilise et bascule l'aimantation hors de sa direction d'équilibre. Il en résulte une précession amortie de l'aimantation, jusqu'au retour à son état initial. La variation de l'angle de l'aimantation  $\theta$  par rapport à l'axe vertical se reflète dans l'angle Kerr polaire  $\theta_k$  qu'on suit dans le temps.

Les mesures Tr-MOKE ont été effectuées avec un champ  $H$  appliqué allant de 5 à 15 kOe, en fonction du délai temporel de la sonde par rapport à la pompe (Fig.IV.6). L'angle Kerr  $\theta_k$  mesuré par la sonde tout au long de la précession est proportionnel à la composante hors plan de l'aimantation et a un comportement oscillatoire caractéristique [He2013] :

$$\theta_k = a + b e^{-\frac{t}{t_0}} + c \sin(2\pi f t + \varphi) e^{-\frac{t}{\tau}}$$

L'angle Kerr  $\theta_k$  décroît de façon exponentielle en un temps  $t_0$ , tout en oscillant avec une fréquence  $f$ , une phase  $\varphi$  et une amplitude  $c$  amortie en un temps  $\tau$  appelé temps de relaxation. Le facteur d'amortissement  $\alpha$  extrait des mesures est proportionnel au rapport entre la période d'oscillation  $1/f$  et le temps de relaxation  $\tau$  :  $\alpha = 1 / (2\pi f \tau)$ . La figure VI.6 montre le cas de Pt/Co/Pd où la fréquence de précession  $f_{\text{ms}}$  augmente de façon monotone de 15 à 41 GHz avec un champ croissant de 5 à 15 kOe. Ce résultat est conforme aux prédictions de la dynamique de l'aimantation en présence d'un axe d'anisotropie vertical et d'un champ externe en résolvant les équations de Landau-Lifshitz-Gilbert [Song2013, Mizukami2015]. Les facteurs d'amortissement ont été déduits des mesures Tr-MOKE pour les empilements avec W, Ta et Pd en couverture respectivement (Fig.VI.7). La valeur du facteur d'amortissement pour W ( $\sim 0.04$ ) est nettement plus faible que celles pour Ta ( $\sim 0.058$ ) et Pd ( $\sim 0.05$ ). L'amortissement en fonction du champ appliqué de 5 à 15 kOe reste du même ordre de grandeur, ce qui veut dire que l'augmentation de la fréquence de précession  $f$  avec le champ  $H$  s'accompagne d'une diminution du temps de relaxation  $\tau$ , comme attendu par les prédictions. Les amortissements trouvés avec la présence des interfaces Co/Mx (Mx = W, Ta et Pd) sont nettement plus faibles qu'avec l'interface Co/Pt (0.3). Il faut souligner qu'un faible amortissement est justement recherché dans des applications spintroniques.



Figures VI.6. Dynamique de l'aimantation de l'empilement Pt(3)/Co(0.8)/Pd(2) par Tr-MOKE. (a) Variation temporelle de l'angle Kerr avec le champ appliqué de 5 à 15 kOe. (b) Transformée de Fourier de (a) où la fréquence de précession  $f_{ms}$  correspond au maximum du spectre.

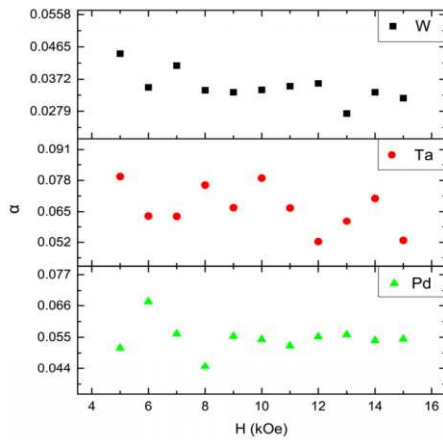


Figure VI.7. Facteur d'amortissement  $\alpha$  des empilements Ta(2) / Pt(3) / Co(0.8) / Mx(2) / Pt(3) (Mx = W, Ta et Pd) en fonction du champ appliqué

### VI.1.3 Effet d'un champ transverse sur les parois de domaines

Une façon de sonder l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) dans une couche ultramince est d'appliquer un champ dans le plan du film et d'analyser l'effet sur les parois de domaines. Au préalable, il est nécessaire de rappeler des éléments importants sur les parois de domaines, leur propagation et la DMI. Pour un domaine avec une paroi de Bloch, la présence d'un champ transverse en plus d'un champ perpendiculaire augmente la vitesse d'expansion du domaine, mais n'affecte pas l'isotropie de l'expansion [Chaves2018]. Pour un domaine avec une paroi de Néel induite par la DMI, la chiralité de la paroi intervient. En effet, la DMI entre deux spins  $\mathbf{S}_1$  et  $\mathbf{S}_2$  est exprimée par  $\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ , où  $\mathbf{D}$  est le vecteur d'interaction. Pour minimiser l'énergie,  $(\mathbf{D}, \mathbf{S}_1, \mathbf{S}_2)$  ont tendance à former un trièdre gauche ou  $\mathbf{S}_2$  par rapport à  $\mathbf{S}_1$  tourne dans le sens horaire autour de  $\mathbf{D}$ . Naturellement, si la constante  $D$  est négative, la rotation sera dans le sens antihoraire et la chiralité droite. Par conséquent, il faut bien distinguer la chiralité d'une paroi de Néel (Fig.VI.8). Pour caractériser la force de la DMI, on utilise souvent un champ équivalent  $H_{DMI}$  qui serait

nécessaire pour transformer une paroi de Bloch en une paroi de Néel :  $\mu_0 H_{DMI} M_s = D/\Delta$  avec  $\Delta$  la largeur de la paroi. Autrement dit, on représente la DMI en termes de champ comme s'il y avait un champ local  $H_{DMI}$  perpendiculaire à la paroi et dirigé dans le sens de l'aimantation moyenne locale de la paroi (Fig.VI.8). Cette vision simplificatrice traduit bien la raison pour laquelle un champ transverse  $H_x$  agit différemment sur la partie de la paroi située à gauche ou à droite d'un domaine : on s'attend à une vitesse d'expansion faible quand  $H_x$  et  $H_{DMI}$  se compensent et une vitesse grande quand  $H_x$  et  $H_{DMI}$  agissent dans le même sens.

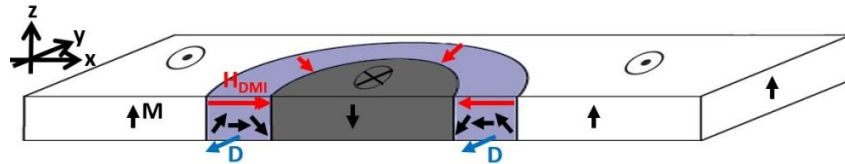


Figure VI.8. Schéma d'une paroi de Néel de chiralité gauche ou sens horaire induite par la DMI de vecteur  $\mathbf{D}$  (flèches bleues). Sur la section et de gauche à droite, les aimantations  $\mathbf{M}$  (flèches noires) tournent dans le sens horaire autour de  $\mathbf{D}$ . L'action de la DMI est interprétée en un champ local  $\mathbf{H}_{DMI}$  (flèches rouges), perpendiculaire à la paroi et dans le sens de l'aimantation moyenne.

Pour l'empilement Ta3/Pt3/Co1/Ru1/Pt3, j'ai d'abord appliqué une impulsion de 5 ms du champ perpendiculaire de 20 mT et analysé la nucléation de domaines par microscopie Kerr polaire (Fig.VI.9(a)), ainsi que l'expansion du domaine par des impulsions supplémentaires du champ perpendiculaire (Fig.VI.9(b,c)). Ceci permet d'établir une référence et de constater qu'aucun effet transversal n'existe statistiquement pour les domaines qui sont de forme quasi-circulaire et ont une propagation isotrope.

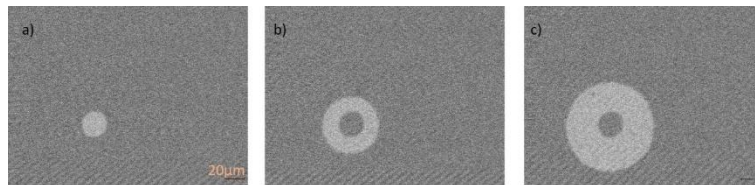
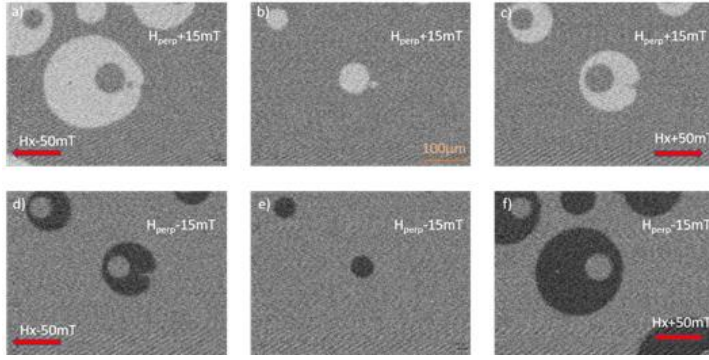


Figure VI.9. Domaines magnétiques dans Ta3/Pt3/Co1/Ru1/Pt3. a) Nucléation d'un domaine avec une impulsion du champ perpendiculaire de 20 mT en 5 ms. b) et c) Différences d'images avec a) montrant l'expansion du domaine après une et deux impulsions supplémentaires, respectivement.

Figure VI.10. Expansion de domaines dans Ta3 / Pt3 / Co1 / Ru1 / Pt3 sous champ perpendiculaire  $H_{perp}$  accompagné d'un champ transverse  $H_x$ . b) Nucléation avec une impulsion  $H_{perp}$  de 15 mT en 10 ms. a) Différence





d'images avec b) après une impulsion  $H_{\text{perp}}$  similaire accompagnée de  $H_x$  de  $-50$  mT. c) Différence d'images avec b) après une impulsion  $H_{\text{perp}}$  similaire accompagnée de  $H_x$  de  $+50$  mT. d)-f) *Bis repetita*, à partir de l'état de saturation inverse et en inversant le champ perpendiculaire par rapport à a)-c).



Figure VI.11. Schémas en section d'un domaine nucléé à partir de la saturation vers le bas (a) ou vers le haut (b) avec une paroi de Néel gauche : les aimantations  $\mathbf{M}$  (flèches noires) le long de l'axe  $x$  tournent dans le sens horaire autour de  $\mathbf{D}$  (flèche bleue pointant hors du dessin) ; les champs  $\mathbf{H}_{\text{DMI}}$  (flèches rouges) pointent vers l'extérieur (a) ou l'intérieur (b) du domaine.

Ensuite et après avoir créé un domaine par une impulsion du champ perpendiculaire  $H_{\text{perp}}$  de  $15$  mT en  $10$  ms (Fig.VI.10(b)) comme précédemment, j'ai appliqué une impulsion supplémentaire de  $H_{\text{perp}}$  en synchronisation avec un champ transverse  $H_x$  de  $-$  ou  $+$   $50$  mT (Fig.VI.10(a,c)). La procédure est répétée à partir de l'état de saturation inverse et en inversant  $H_{\text{perp}}$  (Fig.VI.10(d-f)). De faibles incertitudes et biais de mesures existent, puisque les domaines nucléés avec  $H_{\text{perp}}$  de  $\pm 15$  mT n'ont pas strictement la même forme (Fig.VI.10(b,e)) et que les images avec  $-50$  mT en  $H_x$  (Fig.VI.10(a,d)) ne sont pas exactement symétriques verticalement par rapport à celles avec  $+50$  mT en  $H_x$  (Fig.VI.10(c,f)). Néanmoins, on retrouve ici les principales caractéristiques d'une propagation asymétrique sous  $H_x$  de parois de domaines chirales de Néel, c'est-à-dire que la vitesse d'expansion du domaine vers la gauche est différente de celle vers la droite. Plus précisément, avec  $H_x = -50$  mT (Fig.VI.10(a)), l'expansion vers la gauche est favorisée par rapport à celle vers la droite. La situation s'inverse avec  $H_x = +50$  mT (Fig.VI.10(c)). Cela veut dire que le champ  $H_{\text{DMI}}$  est pointé de l'intérieur vers l'extérieur dans ce domaine, ce qui est compatible avec une paroi de Néel de chiralité gauche (Fig.VI.11(a)). Si on part de l'état de saturation inverse (Fig.VI.10(d-f)), les vitesses d'expansion vers la gauche et vers la droite sont inversées pour un sens de  $H_x$  donné, par rapport à la situation précédente (Fig.VI.10(a-c)). Cela

indique que le champ  $H_{DMI}$  est cette fois-ci pointé de l'extérieur vers l'intérieur du domaine et confirme encore que la paroi est de Néel de chiralité gauche (Fig.VI.11(b)). Par conséquent, la chiralité de la paroi est indépendante de la direction de l'aimantation du domaine, ce qui conforte encore l'idée que la DMI est à l'origine de la texture et de la chiralité de la paroi de ce domaine. Les vitesses d'expansion d'un domaine dans Ta3 / Pt3 / Co1 / Ru1 / Pt3 ont été mesurées à divers champs transverses  $H_x$ , courbes des vitesses que je vais montrer dans le paragraphe suivant pour les comparer avec celles dans Ta3 / Pt3 / Co1 / RuO<sub>2</sub>1 / Pt3. En résumé, la microscopie Kerr a permis de mettre en évidence la présence de parois de Néel et leur chiralité, à travers l'asymétrie dans l'expansion d'un domaine parallèlement ou antiparallèlement à un champ transverse  $H_x$ , selon que  $H_x$  et  $H_{DMI}$  s'ajoutent où se soustraient. Les résultats indiquent la présence de la DMI interfaciale entre Co et atomes de métal lourd dans nos couches ultraminces de Co.

## VI.2 Couverture avec une couche d'oxyde

De la même manière qu'avec des métaux lourds, la proximité du cobalt avec l'oxygène et l'hybridation des orbitales  $2p$  de O et  $3d$  de Co à une interface (Fig.VI.12) modifient et influencent l'anisotropie magnétique de Co. Dans le cas de l'alumine ( $Al_2O_3$ ), il a été montré que l'hybridation des orbitales de O- $2p$  et Co- $3d$  conduit à une modification du champ cristallin qui favorise l'alignement des moments magnétiques perpendiculaire à l'interface Co/ $Al_2O_3$  [Manchon2008]. Il s'agit d'une source d'interaction supplémentaire qui permet l'établissement de la PMA dans une couche ultramince de Co. En plus, la dissymétrie entre les interfaces Pt/Co et Co/oxyde pourraient exalter la DMI de Pt/Co et induire une texture d'aimantations chirale. Dans la continuité de mes études précédentes, j'ai étendu l'exploration par microscopie Kerr au système Pt/Co/oxyde sur les domaines magnétiques dans des empilements de type Ta/Pt/Co/MO<sub>x</sub>/Pt avec MO<sub>x</sub> =  $Al_2O_3$ , MgO et RuO<sub>2</sub>.

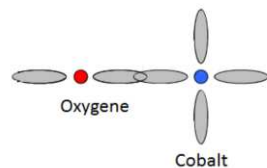


Figure VI.12. Schéma de principe de l'hybridation des orbitales  $2p$  de l'oxygène avec les orbitales  $3d$  du cobalt.

### VI.2.1 Cas de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et MgO

L'élaboration d'une couche d'oxyde est beaucoup plus délicate que celle d'une couche métallique, du fait du caractère isolant de l'oxyde en général et de la présence de l'oxygène en cours de croissance. Nous avons essayé dans un premier temps de réaliser des systèmes Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>3</sub>/Co<sub>1</sub>/MO<sub>x</sub>/Pt<sub>3</sub> en déposant directement la couche d'oxyde avec une cible de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ou MgO. Pour avoir un plasma stable sur la cible, nous avons été obligés de monter la puissance de l'alimentation RF aux alentours de 100 W. Malheureusement avec ces conditions de dépôts, nous n'avons pas réussi à obtenir une PMA dans les couches. Nous avons modifié le protocole de croissance et opté pour une procédure d'oxydation au lieu d'une croissance d'oxyde. Sur un substrat Si/SiO<sub>2</sub>, on dépose successivement une couche de 3 nm de tantale pour l'adhérence, 3 nm de platine, des épaisseurs de cobalt allant de 0,7 à 2,5 nm et puis 1 nm d'aluminium que l'on oxyde à l'aide d'un gaz d'oxygène, avant de remettre une couche protectrice de 3 nm en général de platine. Avec un vide de base de l'ordre de 10<sup>-9</sup> mbar, l'élaboration des couches se fait par pulvérisation cathodique avec un plasma d'argon, avec une puissance de 50 W et sous un vide de 2,5.10<sup>-3</sup> mbar. Avant de procéder à l'oxydation de Al, le bâti est pompé à nouveau jusqu'à un vide de l'ordre de 10<sup>-8</sup> mbar. Puis, un flux d'oxygène de 30 sccm est introduit jusqu'à atteindre une pression de 10<sup>-1</sup> mbar. La montée en pression d'oxygène prend environ 5 minutes et l'échantillon est laissé sous pression durant encore 15 minutes, avant qu'on pompe à nouveau pour revenir à un vide de 10<sup>-8</sup> mbar en environ 15 minutes. Enfin, nous déposons la couche de couverture de platine (3 nm).

Avec la procédure spécialement mise au point pour oxyder l'aluminium, la PMA a été obtenue dans des couches Pt/Co/AlO<sub>x</sub>/Pt. Par la suite, j'ai participé et contribué à l'étude de ces couches minces dans le cadre d'une collaboration entre le LSPM (Villetaneuse), l'IEF (Orsay) et le LPS (Orsay). Les résultats de l'étude ont fait l'objet d'une publication [Belmeguenai2015]. Nos couches ultraminces de Pt/Co/AlO<sub>x</sub>/Pt avec l'épaisseur de Co variant de 0.6 à 1.2 nm ont été analysées par spectroscopie Brillouin sondant les ondes de spins. Les mesures ont révélé une non-réciprocité dans les ondes de spins avec la diminution de l'épaisseur de Co, c'est-à-dire que les déplacements de fréquences Stokes / anti-Stokes, correspondant à la création / l'annihilation de magnons, ne sont plus égaux en valeurs absolues. Nous avons pu attribuer cette non-réciprocité à la DMI interfaciale et déterminer la constante DMI et son signe qui correspondent à une texture d'aimantations chirale Néel gauche dans l'échantillon. Cela suggère que des couches ultraminces de Co d'épaisseur inférieure à 1 nm sont susceptibles de générer des états chiraux tels que skyrmions à la température ambiante. C'est un résultat très encourageant et prometteur pour de futures études approfondies, afin d'optimiser la DMI dans des couches ultraminces magnétiques.

## VI.2.2 Cas de RuO<sub>2</sub> et Ru

Nous n'avons pas pu croître une couche de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ou MgO directement par pulvérisation cathodique sans dégrader magnétiquement l'empilement. Le phénomène est assez général et le plus souvent l'oxydation est nécessaire pour l'obtention de la sous-couche d'oxyde, afin de préserver la PMA de l'empilement [Lin2013, Cao2018, Belmeguenai2015]. L'oxyde de ruthénium RuO<sub>2</sub> constitue une exception et nous avons pu le croître directement par pulvérisation cathodique. Nous avons réussi à utiliser une faible puissance RF de 25 W pour RuO<sub>2</sub>, au lieu de 100 W pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et MgO. Vraisemblablement, des ions et molécules d'oxyde amenés par le plasma d'une plus faible énergie détériorent moins la couche de Co et préservent mieux l'interface Co/RuO<sub>2</sub>.

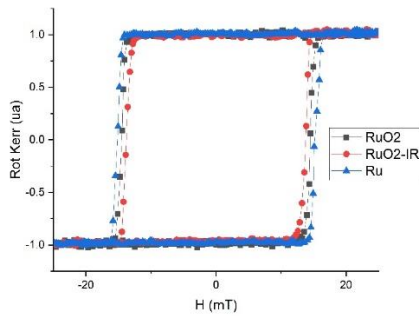
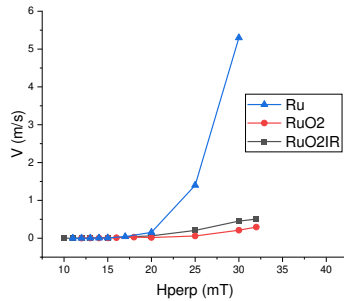


Figure VI.13. Cycles d'hystérésis Kerr polaire des empilements RuO<sub>2</sub> (Ta3 / Pt3 / Co1 / RuO<sub>2</sub>1 / Pt3), RuO<sub>2</sub>-IR (Ta3 / Pt3 / Co1 / RuO<sub>2</sub>1 / Pt3 irradié) et Ru (Ta3 / Pt3 / Co1 / Ru1 / Pt3).

(a)



(b)

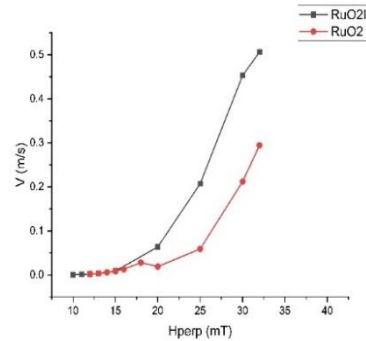


Figure VI.14. Vitesses d'expansion de domaines dans les empilements RuO<sub>2</sub>, RuO<sub>2</sub>-IR et Ru en fonction du champ perpendiculaire  $H_{\text{perp}}$  appliqué en 10 ms (a), avec un agrandissement sur RuO<sub>2</sub> et RuO<sub>2</sub>-IR (b).

Nous avons élaboré des empilements Ta3/Pt3/Co1/RuO<sub>2</sub>1/Pt3 sur Si/SiO<sub>2</sub> avec 1 nm de RuO<sub>2</sub> (noté RuO<sub>2</sub>), ainsi que l'empilement Ta3/Pt3/Co1/Ru1/Pt3 avec 1 nm de Ru métal (noté Ru). Un empilement Ta3/Pt3/Co1/RuO<sub>2</sub>1/Pt3 (noté RuO<sub>2</sub>-IR) a été irradié par un faisceau d'ions He<sup>+</sup> ( $1.1 \times 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>, 8 kV, 40  $\mu$ A, 1 min). Les trois empilements possèdent la PMA avec des champs coercitifs proches : 14.5 mT avec RuO<sub>2</sub>, 13.5 mT avec RuO<sub>2</sub>-IR et 15.5 mT avec Ru

(Fig.VI.13). En revanche, la vitesse de propagation de parois de domaines est fortement réduite avec  $\text{RuO}_2$  et  $\text{RuO}_2\text{-IR}$  par rapport au cas de  $\text{Ru}$  pur (Fig.VI.14). Sous une impulsion de 10 ms d'un champ perpendiculaire de 20 mT, la vitesse de propagation est de  $7 \mu\text{m/ms}$  avec  $\text{RuO}_2$  et de  $26 \mu\text{m/ms}$  avec  $\text{Ru}$ . L'écart des vitesses augmente en plus avec la valeur du champ perpendiculaire. Par ailleurs, l'irradiation a abaissé le champ de seuil de dépiégeage, passant d'un seuil au-dessus de 20 Oe pour les échantillons  $\text{RuO}_2$  et  $\text{Ru}$  à environ 17 Oe pour  $\text{RuO}_2\text{-IR}$ . Ces caractéristiques reflètent la différence d'interfaces entre  $\text{Co/RuO}_2$  et  $\text{Co/Ru}$ .

L'effet d'un champ transverse sur la propagation de domaines a été étudié par microscopie Kerr (Fig.VI.15). Dans  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_3/\text{Co}_1/\text{RuO}_2/\text{Pt}_3$ , un domaine est d'abord nucléé par un champ perpendiculaire de 20 mT en 10 ms (Fig.VI.15(b)). L'expansion du domaine est provoquée par une impulsion supplémentaire de 10 ms du champ perpendiculaire de 20 mT en présence d'un champ transverse négatif de -50 mT dirigé vers la gauche (Fig.VI.15(a)). La vitesse d'expansion vers la gauche est plusieurs fois plus élevée que celle vers la droite. Si le champ transverse est de +50 mT dirigé vers la droite, la situation de l'expansion vers la gauche ou vers la droite s'inverse (Fig.VI.15(c)) par rapport au cas précédent (Fig.VI.15(a)). Par conséquent, l'expansion de domaines sous champ perpendiculaire assisté d'un champ transverse est similaire dans les trois échantillons  $\text{RuO}_2$ ,  $\text{RuO}_2\text{-IR}$  et  $\text{Ru}$  (Fig.VI.10), toutefois avec des vitesses différentes.

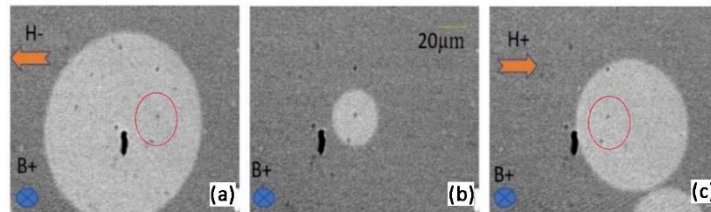
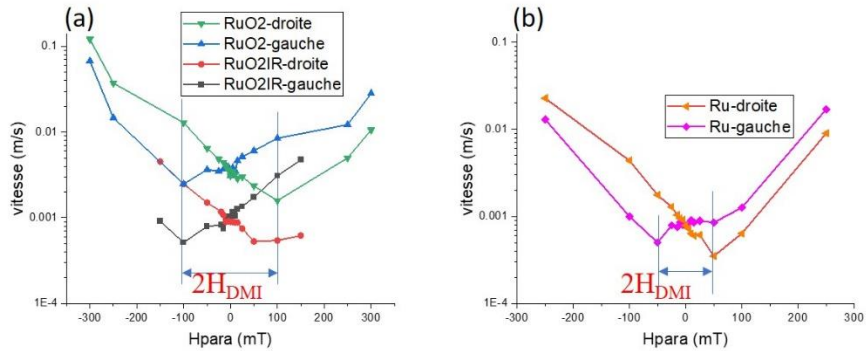


Figure VI.15. Expansion de domaines dans  $\text{Ta}_3 / \text{Pt}_3 / \text{RuO}_2 / \text{Pt}_3$  sous champ perpendiculaire accompagné d'un champ transverse. (b) Nucléation d'un domaine avec une impulsion perpendiculaire de 20 mT en 10 ms. (a) Expansion du domaine après une impulsion perpendiculaire similaire accompagnée d'un champ transverse de -50 mT où le contour rouge symbolise l'emplacement du domaine initial. (c) Expansion du domaine après une impulsion perpendiculaire similaire accompagnée d'un champ transverse de +50 mT

Pour comparer les vitesses de propagation dans les trois échantillons, j'ai fixé le champ perpendiculaire à 13 mT et la durée à 10 ms et déterminé les vitesses d'expansion d'un domaine vers la gauche et vers la droite en fonction du champ transverse à partir des images Kerr (Fig.VI.16). Plus précisément, le protocole de mesures est le suivant : à chaque étape, on revient à la saturation, nucléé le même domaine avec le champ perpendiculaire de 13 mT en 10 ms et puis appliqué une impulsion supplémentaire en champ perpendiculaire accompagnée d'un champ transverse. Nous

constatons qu'à variations et biais de mesures près, les courbes de vitesses vers la gauche et vers la droite sont globalement symétriques verticalement par rapport au champ transverse, comme attendu. Les champs transverse pour lesquels les vitesses sont minimales permettent de déduire les champs  $H_{DMI}$  qui sont d'environ 50 mT pour Ru, 75 mT pour  $RuO_2-IR$  et 100 mT pour  $RuO_2$ . Le champ  $H_{DMI}$  double de la structure Pt/Co/Ru à celle Pt/Co/ $RuO_2$ , ce qui reflète vraisemblablement le fait que la dissymétrie des interfaces par rapport à Pt/Co est plus forte avec une couverture en oxyde qu'en un autre métal lourd. Par ailleurs, l'irradiation semble modifier et réduire la DMI dans le cas présent. Il sera certainement intéressant d'approfondir ce point, afin de détailler l'impact de l'irradiation sur la structure des couches et des interfaces et savoir si la DMI peut être modifiée de façon contrôlée par l'irradiation.



Figures VI.16. Vitesses de propagation de la paroi à gauche (-gauche) et de la paroi à droite (-droite) d'un domaine dans les échantillons  $RuO_2$  et  $RuO_2-IR$  (a) et Ru (b), en fonction du champ transverse ( $H_{para}$ ) accompagnant l'impulsion du champ perpendiculaire de 13 mT en 10 ms.

### VI.3 Conclusion sur le couplage d'échange d'interface

Nous avons brisé la symétrie des interfaces autour de Co dans Pt/Co/Pt en remplaçant Pt de couverture par un autre métal en particulier un métal lourd ou une couche d'oxyde. La procédure d'élaboration des empilements a été modifiée et adaptée aux matériaux et la PMA a été obtenue dans ces nouvelles structures. Nous avons montré que l'anisotropie magnétique et la dynamique de l'aimantation sont grandement influencées et modifiées par la nouvelle interface Co/métal et Co/oxyde. Par analyse de domaines magnétiques, nous avons mis en évidence l'effet asymétrique du champ transverse dans l'expansion de domaines parallèlement ou antiparallèlement au champ transverse, ce selon l'état de saturation perpendiculaire initial positif ou négatif. L'ensemble des observations peut être interprété de façon cohérente avec un domaine dont la paroi est de type Néel

de chiralité définie. Les vitesses de propagation de parois mesurées ont permis de déterminer les champs  $H_{DMI}$  dans nos structures Pt/Co/RuO<sub>2</sub>, Pt/Co/RuO<sub>2</sub> irradié et Pt/Co/Ru et de montrer une DMI plus forte avec l'oxyde RuO<sub>2</sub> qu'avec le métal Ru en couverture. Ces résultats sont conformes dans le principe aux connaissances actuelles sur la DMI [Je2013, Belmeguenai2015, Cao2018]. Cependant, beaucoup reste à faire pour cerner en détails des mécanismes qui déterminent le couplage d'échange d'interface notamment la DMI. Il faut souligner que la microscopie Kerr pouvant fournir une mesure quantitative constitue un outil fort utile et pratique pour une exploration rapide de la DMI pour la spintronique.

## Conclusions et perspectives

Ce travail de thèse s'inscrit dans une perspective pour le développement de mémoires magnétiques innovantes, afin d'optimiser leurs processus d'écriture et de lecture, de réduire leur taille et de diminuer leur consommation d'énergie. L'objectif a été, d'une part, d'obtenir, de comprendre et de modifier la PMA de couches ultraminces magnétiques et, d'autre part, de pouvoir renverser et manipuler l'aimantation dans des nanostructures par tous les leviers possibles : champ magnétique, courant électrique, tension électrique, déformation, lumière, *etc.*

Les travaux décrits sont basés sur mes activités professionnelles, surtout depuis 2015. J'ai extrait et regroupé des études sur des structures à base de Pt/Co avec PMA. J'ai développé et mis en place des outils nécessaires en France et en Chine pour l'élaboration (pulvérisation cathodique), la caractérisation (MOKE, microscopie Kerr) et le traitement (irradiation ionique) de couches ultraminces magnétiques. Certains équipements sont interconnectés sous vide, permettant des mesures *in-situ* des échantillons protégés ainsi de l'oxydation et de la pollution par l'atmosphère ambiante. Il faut souligner que bien au-delà du système Pt/Co décrit ici, de nombreux étudiants et chercheurs ont bénéficié de ces équipements et de mon assistance pour mener à bien leurs travaux.

Dans ce manuscrit, j'ai d'abord décrit l'élaboration et l'obtention de la PMA de couches ultraminces Pt/Co/Pt, avec l'épaisseur de Co autour de 1 nm. Une couche tampon de Ta d'environ 3 nm s'est avérée bénéfique pour la texturation de la première couche de Pt en orientation (111), ce qui entraîne une bonne texturation du reste des couches. J'ai montré l'importance des paramètres d'élaboration, pression et température, sur la PMA. En vue d'applications, j'ai réalisé le dépôt de Pt/Co/Pt et obtenu la PMA des films sur divers substrats solides, Si/SiO<sub>2</sub>, MgO, SrTiO<sub>3</sub>, ZnO, GaN, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> et YSZ, et souples, Kapton, PET et PEN. Dans le cas de substrats souples, la croissance se fait à la température ambiante et un recuit post-croissance n'est pas possible. L'irradiation par

ions légers  $\text{He}^+$ , outil que j'ai mis en place, a été particulièrement utile pour modifier la PMA et diminuer des défauts natifs des films. J'ai caractérisé la coercivité magnétique des films par MOKE et VSM et analysé en parallèle la nucléation et la propagation de domaines magnétiques par microscopie Kerr. J'ai montré que le renversement de l'aimantation peut être dominé par la nucléation et une rapide propagation de domaines inversés ou par une multitude de nucléations avec une propagation limitée spatialement à cause des centres de piégeages.

J'ai ensuite exploré différentes voies pour modifier et voire contrôler la PMA des films à base de Pt/Co. Une méthode originale consiste à utiliser une couche tampon de  $\text{VO}_2$  de 20 nm et exploiter sa transition de phases autour de 340 K pour induire un effet magnétoélastique dans  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$ . Ainsi, une modulation réversible en température de la PMA et de la résistance Hall a été obtenue. Un dépôt à chaud (373 K) des couches magnétiques sur  $\text{VO}_2$  a permis même de pré-contraire les couches de  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  et d'accroître la variabilité en température de la PMA par rapport à l'échantillon fait à l'ambiante. La PMA d'autres structures, piézoélectriques / ferromagnétiques, diélectriques / ferromagnétiques et multicouches de Pt/Co, a été également analysée, montrant une grande variabilité de la PMA en fonction des conditions de croissance et des paramètres structuraux, épaisseurs des sous-couches de Pt et Co et des couches d'oxydes en tant que couche tampon ou couche de couverture. La dernière méthode exposée dans le manuscrit pour influencer le magnétisme de Co consiste à appliquer une tension dans une hétérostructure Pt/Co/Pt/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ /ITO entre Pt/Co/Pt et l'ITO. Des résultats préliminaires indiquent qu'une accumulation de charges dans la couche de couverture de Pt à proximité de Co a un effet direct sur le renversement de l'aimantation dans la couche de Co.

J'ai enfin abordé le couplage d'échange interfacial de type interaction Dzyaloshinskii-Moriya dans des couches ultraminces Pt/Co/métal lourd et Pt/Co/oxyde. En dissymétrisant les interfaces autour de Co, la DMI peut être exaltée. Pour ces nouvelles structures, l'impact d'un métal lourd (W, Ta, Pd, Ru) autre que Pt ou d'une couche d'oxyde sur la PMA a été analysée par MOKE et VSM et la dynamique de l'aimantation par Tr-MOKE sub-picoseconde. La DMI dans ces structures a été sondée par microscopie Kerr à travers la propagation de parois de domaines provoquée par un champ perpendiculaire en présence d'un champ transverse. Pour les structures Pt/Co/Ru et Pt/Co/ $\text{RuO}_2$ , une expansion anisotrope de domaines magnétiques en présence d'un champ transverse a permis d'identifier des parois de domaines comme parois de Néel de chiralité définie. A partir des vitesses d'expansion anisotrope de domaines, nous avons eu accès au champ de Dzyaloshinskii-Moriya qui est d'environ 50 mT dans Pt/Co/Ru et du double dans Pt/Co/ $\text{RuO}_2$ . Ces résultats suggèrent que des couches nanométriques de Co en contact avec des métaux lourds à



fort couplage spin-orbite sont susceptibles de générer et de supporter des états chiraux tels que skyrmions à la température ambiante.

Ce travail montre que les structures à base de Pt/Co sont riches en propriétés et propices pour les applications. Néanmoins, beaucoup reste à faire afin d'approfondir la compréhension et de parvenir à la maîtrise de la PMA et de la DMI. A court terme, je poursuis une étude systématique sur la DMI dans nos couches Pt/Co avec différentes couches de couverture. Je compte également exploiter plus l'irradiation ionique pour modifier et améliorer des propriétés des films, en parallèle avec des simulations. C'est ce que nous avons commencé à faire avec nos nano-capteurs et des nano-capteurs industriels basés sur des films avec PMA, afin d'améliorer leurs paramètres intrinsèques (précision, sensibilité et linéarité). Au-delà du système Pt/Co, il est certainement intéressant d'étendre ce type d'investigations sur d'autres matériaux ferromagnétiques, par exemples FeAg, CoNi et CoFeB, d'autres alliages à base de terres rares (Tb) et de métaux de transition et semi-conducteurs magnétiques (GaMnAs).

Des couches ultraminces magnétiques avec PMA et DMI ouvrent des perspectives immenses, eu égard à de nombreuses applications et innovations potentielles. Des mémoires et dispositifs spintroniques de prochaine génération basés sur des skyrmions induits par la DMI offrent la promesse d'une grande stabilité topologiquement protégée, d'une petite taille et d'un très faible courant pour le déplacement. En particulier, le concept « racetrack memory » peut devenir réalité avec des skyrmions au lieu de domaines magnétiques classiques (Fig.PE.1) [Zhang2015]. La manipulation de l'aimantation par des leviers autres que le champ magnétique est extrêmement intéressante pour les applications, comme l'exemple de VO<sub>2</sub> dans ce manuscrit qui, à travers sa transition de phases, module l'anisotropie magnétique de Pt/Co. Dans ce domaine, l'utilisation d'un faisceau laser retient particulièrement l'attention, car la manipulation peut être ultra-rapide. Actuellement, des pulses laser multiples sont encore nécessaires le plus souvent dans la manipulation, ce qui dégrade la vitesse et l'efficacité. Récemment, des chercheurs ont montré sur une « racetrack memory » en Pt/Co/Gd qu'un seul pulse laser assisté de l'effet Hall de spin dans le film permet d'inscrire un domaine, d'une part, et un courant électrique de déplacer les domaines magnétiques, d'autre part (Fig.PE.2) [Lalieu2019]. Ceci ouvre la perspective d'une manipulation tout optique en écriture et en lecture de domaines magnétiques.

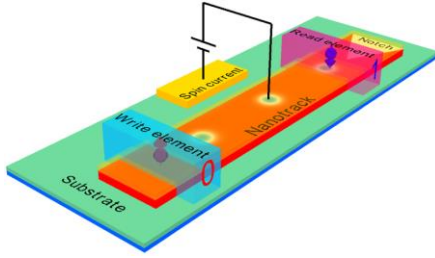


Figure PE.1. Schéma de conception d'une « skyrmion-based racetrack memory » où les skyrmions sont générées par l'injection de courant polarisé en spins et contrôlés dans leur espacement et déplacement par la modulation de la PMA de la piste. Figure tirée de [Zhang2015].

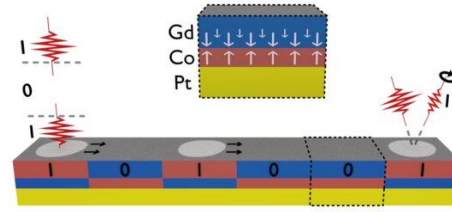


Figure PE.2. Schéma d'une « racetrack memory » en Pt/Co/Gd où un domaine est inscrit par un seul pulse laser grâce à l'effet Hall de spin dans le film et transporté par un courant électrique [Lalieu2019]. Figure tirée de <https://phys.org/news/2019-01-photonic-memory-devices-light-written-ultrafast.html>

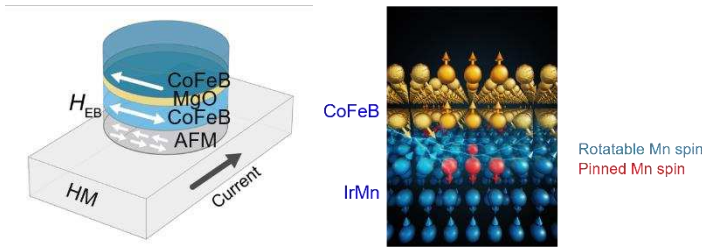


Figure PE.3. Illustration du couplage AFM/FM dans une structure IrMn / CoFeB / MgO / CoFeB.

Le couplage entre un antiferromagnétique et un ferromagnétique constitue actuellement un domaine de recherches très dynamique et prometteur. L'effet « exchange bias » est bien connu pour AFM/FM. Cependant, comment exploiter l'effet de façon dynamique et réversible, pour changer le champ coercitif du FM à volonté ? Des études récentes sur une structure IrMn/CoFeB avec PMA montrent que l'échange-bias peut être modifié dans la couche AFM (IrMn) par un courant électrique en exploitant le mécanisme du couple spin-orbite (Fig.PE.3) [Xiong2022]. Ainsi, une manipulation du renversement de l'aimantation à l'aide de la modification réversible du champ d'échange-bias peut être envisagée dans un nouveau type de mémoires EB-MRAM (Exchange Bias - Magnetic Random Access Memory). Le couplage AFM/FM est un domaine dans lequel je voudrais m'investir dans le futur.

## Bibliographie

- [Adam2008] J. P. Adam, Du renversement sous champ de l'aimantation d'un nano-plot au déplacement sous courant d'une paroi de domaines dans une nano-piste par microscopie Kerr polaire. *Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI*, (2008).
- [Ahn2002] K. H. Ahn and S. Baika, change of growth orientation in Pt films epitaxially grown on MgO (001) substrates by sputtering, *J. Mater. Res.* **17**, 2334-2338 (2002)
- [Attane2006] J. P. Attane, D. Ravelosona, A. Marty, Y. Samson and C. Chappert, Thermally Activated Depinning of a Narrow Domain Wall from a Single Defect. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 147204 (2006).
- [Atkinson2003] D. Atkinson, D. A. Allwood, G. Xiong, M. D. Cooke, C. C. Faulkner, R. P. Cowburn, Magnetic domain-wall dynamics in a submicrometre ferromagnetic structure, *Nat. Mater.* **9**, 85 (2003).
- [Azzawi2016] S. Azzawi, A. Ganguly, M. Tokac, R. M. Rowan-Robinson, J. Sinha, A. T. Hindmarch, A. Barman and D. Atkinson, Evolution of damping in ferromagnetic/nonmagnetic thin film bilayers as a function of nonmagnetic layer thickness, *Phys. Rev. B* **93**, 054402 (2016)
- [Baibich1988] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen van Dau, F. Pétroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [Barbier1993] A. Barbier, Structure cristallographique, électronique et magnétique de dépôts de platine sur du cobalt (hcp) monocristallin et de sandwiches Co/Pt/Co(hcp), *Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur - Strasbourg I* (1993).
- [Barman2007] A. Barman, S. Wang, O. Hellwig, A. Berger, E. E. Fullerton and H. Schmidt, Ultrafast magnetization dynamics in high perpendicular anisotropy [Co/Pt]<sub>(n)</sub> multilayers, *J. Appl. Phys.* **101**, 09D102 (2007).
- [Belmeguenai2015] M. Belmeguenai, J. P. Adam, Y. Roussigné, S. Eimer, T. Devolder, J.-V. Kim, S. M. Cherif, A. Stashkevich and A. Thiaville, Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly-magnetized Pt/Co/AlOx ultrathin films measured by Brillouin light spectroscopy, *Phys. Rev. B* **91**, 180405(R) (2015).
- [Bencan2020] A. Bencan, G. Drazic, H. Ursic, M. Makarovic, M. Komelj and T. Rojac, Domain-wall pinning and defect ordering in BiFeO<sub>3</sub> probed on the atomic and nanoscale, *Nat Commun.* **11**, 1762 (2020).
- [Bernas2003] H. Bernas, J.-Ph. Attane, J. K.-H. Heinig, D. Halley, D. Ravelosona, A. Marty, P. Auric, C. Chappert and Y. Samson, Ordering Intermetallic Alloys by Ion Irradiation: A Way to Tailor Magnetic Media, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 77203 (2003).
- [Binasch1989] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange, *Phys. Rev.* **B 39**, 4828 (1989).
- [Bode2003] M Bode. Spin-polarized scanning tunnelling microscopy, *Rep. Prog. Phys.* **66**, 523-582 (2003).
- [Borisov2005] P. Borisov, A. Hochstrat, X. Chen, W. Kleemann and C. Binek, Magnetoelectric Switching of Exchange Bias, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 117203 (2005).
- [Briones2008] J. Briones, F. Montaigne, D. Lacour, M. Hehn, M. J. Carey and J. R. Childress, Magnetic domain wall propagation in a submicron spin-valve stripe: Influence of the pinned layer, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 032508 (2008).
- [Bruno 1989] P. Bruno. Tight-binding approach to the orbital magnetic moment and magnetocrystalline anisotropy of transition-metal monolayers. *Phys. Rev. B* **39**, 865 (1989).

- [Burrowes2013] C. Burrowes, N. Vernier, J.-P. Adam, L. Herrera Diez, K. Garcia, I. Barisic, G. Agnus, S. Eimer, J.-V. Kim, T. Devolder, A. Lamperti, R. Mantovan, B. Ockert, E. E. Fullerton and D. Ravelosona, Low depinning fields in Ta-CoFeB-MgO ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy, *Appl. Phys. Lett.* **103**: 182401 (2013).
- [Butler2005] W. H. Butler, X. G. Zhang, S. Vutukuri, M. Chshiev and T. C. Schulthess, Theory of tunneling magnetoresistance for epitaxial systems, *IEEE Trans. Magn.* **41**, 2645 - 2648 (2005).
- [Cao2018] A. Cao, X. Zhang, B. Koopmans, S. Peng, Y. Zhang, Z. Wang, S. Yan, H. Yang and W. Zhao, Tuning the Dzyaloshinskii–Moriya interaction in Pt/Co/MgO heterostructures through the MgO thickness. *Nanoscale* **10**, 12062–12067 (2018).
- [Carcia1985] P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt and A. Suna, Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co thin film layered structures, *Appl. Phys. Lett.* **47**, 178–180 (1985).
- [Cavalleri2004] A. Cavalleri, T. Dekorsy, H. H. W. Chong, J. C. Kieffer and R. W. Schoenlein, Phase Transition in VO<sub>2</sub>: Time-domain Assignment of Cause and Effect in Presence of Strong Correlations, *Phys. Rev. B* **70**, 161102 (2004).
- [Carcia 1988] P. F. Carcia, Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co and Pt/Co thin-film layered structures, *J. Appl. Phys.* **63**, 5066–5073 (1988).
- [Chappert1988] C. Chappert and P. Bruno, Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films (invited), *J. Appl. Phys.* **64**, 5736–5741 (1988).
- [Chaves2018] Dayane de Souza Chaves, The dynamics of chiral domain walls in multilayer films with perpendicular magnetic anisotropy, *Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes* (2018).
- [Chen2010] J. Chen, J. Feng, Z. Diao, G. Feng, J. Coey and X. Han, Magnetic Properties of Exchange-Biased [Co/Pt](n) Multilayer With Perpendicular Magnetic Anisotropy, *IEEE Trans. Magn.* **46**, 1401 – 1404 (2010).
- [Chiba2011] D. Chiba, S. Fukami, K. Shimamura, N. Ishiwata, K. Kobayashi and T. Ono, Electrical control of the ferromagnetic phase transition in cobalt at room temperature, *Nat. Mater.* **10**, 853 (2011).
- [Chiba2012] D. Chiba, M. Kawaguchi, S. Fukami, N. Ishiwata, K. Shimamura, K. Kobayashi and T. Ono, Electric-field control of magnetic domain-wall velocity in ultrathin cobalt with perpendicular magnetization, *Nat. Commun.* **3**, 888 (2012).
- [Choe1999] G. Choe and M. Steinback, Surface roughness effects on magnetoresistive and magnetic properties of NiFe thin films, *J. Appl. Phys.* **85**, 5777 (1999).
- [Chung2008] T. K. Chung, G. Carman and K. Mohanchandra, Reversible magnetic domain-wall motion under an electric field in a magnetoelectric thin film, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 112509 (2008).
- [Devolder 1999] T. Devolder, C. Chappert, Y. Chen, E. Cambri, H. Bernas, J.P. Jamet and J. Ferré, Sub-50 nm planar magnetic nanostructures fabricated by ion irradiation, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3383 (1999).
- [Devolder2000] T. Devolder, Light ion irradiation of Co/Pt systems: Structural origin of the decrease in magnetic anisotropy. *Phys. Rev. B* **62**, 5794 (2000).
- [Devolder 2000a] T. Devolder, Structuration et nanostructuration de couches magnétiques Co/Pt par irradiation ionique, *Thèse de doctorat, Université Paris XI* (2000).
- [Devolder2018] T. Devolder, S. Couet, J. Serts and G. S. Kar, Gilbert damping of high anisotropy Co/Pt multilayers, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 135002 (2018).

[Dieny1991] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri, Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers, *Phys. Rev. B* **43**, 1297(R) (1991).

[Dzyaloshinsky1958] I. Dzyaloshinsky, A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241-255 (1958).

[Eimer2023] S. Eimer, H. Cheng, J. Li, X. Zhang, C. Zhao and W. Zhao, Perpendicular magnetic anisotropy based spintronics devices in Pt/Co stacks under different hard and flexible substrates, *Sci. China Inf. Sci.* **66**, 122408 (2023).

[Ellis2018] E. A. I. Ellis, M. Chmielus and S. P. Baker, Effect of sputter pressure on Ta thin films: Beta phase formation, texture, and stresses. *Acta Materialia*, **150**, 317-326 (2018).

[Ellis2020] E. A. I. Ellis, M. Chmielus, S. Han and S. P. Baker, Effect of sputter pressure on microstructure and properties of  $\beta$ -Ta thin films. *Acta Materialia*, **183**, 504-513 (2020).

[Emori2011] S. Emori and G. S. D. Beach, Optimization of out-of-plane magnetized Co/Pt multilayers with resistive buffer layers, *J. Appl. Phys.* **110**, 033919 (2011).

[Endo2010] M. Endo, S. Kanai, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno, Electric-field effects on thickness dependent magnetic anisotropy of sputtered MgO/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/TaMgO/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/Ta structures, *App. Phys. Lett.* **96**, 212503 (2010).

[Fassbender2004] J. Fassbender, D. Ravelosona and Y. Samson, Tailoring Magnetism by Light-Ion Irradiation, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37**, R179 (2004).

[Feng2018] C. Feng, S. Wang, L. Yin, X. Li, M. Yao, F. Yang, X. Tang, L. Wang, W. Mi and G. Yu, Significant Strain-Induced Orbital Reconstruction and Strong Interfacial Magnetism in TiNi(Nb)/Ferromagnet/Oxide Heterostructures via Oxygen Manipulation, *Adv. Funct. Mater.* **28**, 1803335 (2018).

[Ferré2002] J. Ferré, Dynamics of Magnetization Reversal: From Continuous to Patterned Ferromagnetic Films, In book: Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I (pp.127-165), *Topics in Applied Physics* **83**, (2002).

[Fert2013] A. Fert, V. Cros and J. Sampaio, Skyrmions on the track, *Nat. Nanotech.* **8**, 152–156 (2013).

[Fujita2008] N. Fujita, N. Inaba, F. Kirino, S. Igarashi, K. Koike, H. Kato, Damping constant of Co/Pt multilayer thin-film media, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 3019–3022 (2008).

[Fukami2014] S. Fukami, M. Yamanouchi, S. Ikeda and H. Ohno, Domain wall motion device for nonvolatile memory and logic—Size dependence of device properties. *IEEE Trans. Magn.* **50**, 1-6 (2014).

[Fukumoto2005] K. Fukumoto, W. Kuch, J. Vogel, J. Camarero, S. Pizzini, F. Offi, Y. Pennec, M. Bonfim, A. Fontaine and J. Kirschner, Mobility of domain wall motion in the permalloy layer of a spin-valve-like Fe<sub>20</sub>Ni<sub>80</sub>/Cu/Co trilayer, *J. Magn. Magn. Mater.* **293**, 863-871 (2005).

[Fukumoto2006] K. Fukumoto, W. Kuch, J. Vogel, F. Romanens, S. Pizzini, J. Camarero, M. Bonfim and J. Kirschner, Dynamics of Magnetic Domain Wall Motion after Nucleation: Dependence on the Wall Energy, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 097204 (2006).

[Garello2013] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin and P. Gambardella, Symmetry and Magnitude of Spin-orbit Torques in Ferromagnetic Heterostructures, *Nat. Nanotech.* **8**, 58793 (2013).

[Ghibaudo2014] G. Ghibaudo, S. Barraud, M. Cassé, X. P. Wang; G. Q. Lo, D.-L. Kwong, M. Pala and Z. Fang, Nanowire Devices, In book: Beyond-CMOS Nanodevices 2 (pp.25-95), *Wiley* (2014).

[Gilbert 1956] T. L. Gilbert, *Ph.D. thesis, Illinois Institute of Technology, Chicago*, 1956.

- [Gilbert2004] T. L. Gilbert, A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials, *IEEE Trans. Magn.* **40**, 3443 (2004).
- [Hayes1985] W. Hayes and A.M. Stoneham, Defects and defect processes in nonmetallic solids, *John Wiley Sons, Inc.* (1985).
- [Haazen2013] P. P. J. Haazen, E. Murè, J. H. Franken, R. Lavrijsen, H. J. M. Swagten and B. Koopmans, Domain wall depinning governed by the spin Hall effect, *Nat. Mater.* **12**, 299 (2013).
- [Hayashi2008] M. Hayashi, L. Thomas, R. Moriya, C. Rettner, S. S. P. Parkin, Current-Controlled Magnetic Domain-Wall Nanowire Shift Register, *Science* **320**, 209-211 (2008).
- [He2013] P. He, X. Ma, J. W. Zhang, H. B. Zhao, G. Lupke, Z. Shi and S. M. Zhou, Quadratic Scaling of Intrinsic Gilbert Damping with Spin-Orbital Coupling in L10 FePdPt Films: Experiments and *Ab Initio* Calculations, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 077203 (2013).
- [Hehn2021] M. Hehn, G. Malinowski et S. Mangin, Retournement d'aimantation dans un dispositif « Spintronique » par impulsion d'électrons unique ultra-courte, *Photoniques* **108**, 36-39 (2021).
- [Heide2008] M. Heide, G. Bihlmayer and S. Blügel, Dzyaloshinskii-moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films: Fe/W(110), *Phys. Rev. B* **78**, 140403(R) (2008).
- [Huang2021] D. Huang, D. Lattery and X. Wang, Materials Engineering Enabled by Time-Resolved Magneto-Optical Kerr Effect for Spintronic Applications, *ACS Appl. Electron. Mater.* **3**, 119-127 (2021).
- [Huang1998] J. C. A. Huang, L. C. Wu, A. C. Hsu, Y. M. Hu, T. H. Wu and C. H. Lee, Epitaxial growth, perpendicular magnetic anisotropy, and domain structure of Co/Pt(311) and (111) multilayers, *Phys. Rev. B* **59**, 1209-1213 (1998).
- [Huang2002] J. C. A. Huang, M. M. Chen, C. H. Lee, T. H. Wu and C. M. Fu, Pt thickness and buffer layer effects on the structure and magnetism of Co/Pt multilayers, *J. Magn. Magn. Mater.* **239**, 326-328 (2002).
- [Huang2015] K. F. Huang, D. S. Wang, D. H. H. Lin and C. H. Lai, Engineering spin-orbit torque in Co/Pt multilayers with perpendicular magnetic anisotropy, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 232407 (2015).
- [Iihama2014] S. Iihama, S. Mizukami, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando and T. Miyazaki, Gilbert damping constants of Ta/CoFeB/MgO (Ta) thin films measured by optical detection of precessional magnetization dynamics, *Phys. Rev. B* **89**, 174416 (2014).
- [Ikeda2010] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura and H. Ohno, A perpendicular-anisotropy CoFeB-MgO magnetic tunnel junction, *Nat. Mater.* **9**, 721 (2010).
- [Jacyna2018] I. Jacyna, D. Klinger, J.B. Peřka, R. Minikayev, P. Dłuzewski, E. Dynowska, M. Jakubowski, M.T. Klepka, D. Zymierska, A. Bartnik, Z. Kurant, A. Wolska, A. Wawro, I. Sveklo, J.R. Plaisier, D. Eichert, F. Brigidi, I. Makhotkin, A. Maziewski and R. Sobierajski, Study of ultrathin Pt/Co/Pt trilayers modified by nanosecond XUV pulses from laser-driven plasma source, *J. Alloys Compd.* **763**, 899-908 (2018).
- [Je2013] S. G. Je, D. H. Kim, S. C. Yoo, B. C. Min, K. J. Lee and S. B. Choe, Asymmetric magnetic domain-wall motion by the Dzyaloshinskii-Moriya interaction, *Phys. Rev. B* **88**, 214401 (2013).
- [Jeong2013] J. Jeong, N. Aetukuri, T. Graf, T. D. Schladt, M. G. Samant, and S. S. P. Parkin, Suppression of metal-insulator transition in VO<sub>2</sub> by electric field-induced oxygen vacancy formation, *Science* **339**, 1402 (2013).
- [Han2018] J. H. Han, Skyrmions in Condensed Matter, *Springer Tracts in Modern Physics*, 278 (2018), ISBN-10: 3319887416, ISBN-13: 978-3319887418.

- [Jung2021] D. H. Jung, H.-S. Han, N. Kim, G. Kim, S. Jeong, S. Lee, M. Kang, M.-Y. Im and K.-S. Lee, Magnetic skyrmion diode: Unidirectional skyrmion motion via symmetry breaking of potential energy barriers, *Phys. Rev. B* **104**, L060408 (2021).
- [Jung2021] J. Jung, J. Cho, H. C. Choi, K. Lee, C.-Y. You, S. B. Choe and J.S. Kim, Modulations of interfacial magnetic properties using structurally inverted magnetic tri-layer systems: Toward skyrmion formation, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 262408 (2021).
- [Johnson 1996] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder and J. J. de Vries, Magnetic anisotropy in metallic multilayers, *Rep. Prog. Phys.* **59**, 1409 (1996).
- [Kaidatzis2015] A. Kaidatzis, C. Bran, V. Psycharis, M. Vazquez, J.-M. Garcia-Martin and D. Niarchos, Tailoring the magnetic anisotropy of CoFeB/MgO stacks onto W with a Ta buffer layer, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 262401 (2015).
- [Kang2017] W. Kang, D. Zhu, Z. Huang, W. Zhou and F. Luo, Effects of annealing temperature on the structure, electrical resistivity and infrared emissivity of PtOx films, *Vacuum* **145**, 174-178 (2017).
- [Kasuya1956] T. Kasuya, Electrical Resistance of Ferromagnetic Metals, *Prog. Theor. Phys.* **16**, 45-57 (1956).
- [Kim2014] Y. Kim, H. Han, I. Vrejoiu, W. Lee, D. Hesse and M. Alexe, Origins of domain wall pinning in ferroelectric nanocapacitors, *Nano Convergence* **1**, 24 (2014).
- [Kim2015] N. H. Kim, D. S. Han, J. Jung, J. Cho, J. S. Kim, H. J. M. Swagten and C.Y. You, Improvement of the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction by introducing a Ta buffer layer, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 142408 (2015).
- [Kyuno1996] K. Kyuno, J.-G. Ha, R. Yamamoto and S. Asano, Magnetoelastic contribution to the interface anisotropy of Pd/Co metallic multilayers, *Phys. Rev. B*, **54**, 1092 (1996).
- [Kisielewski 2003] M. Kisielewski, A. Maziewski, M. Tekielak, J. Ferré, S. Lemerle, V. Mathet and C. Chappert, Magnetic anisotropy and magnetization reversal processes in Pt/Co/Pt films, *J. Magn. Magn. Mater.* **260**, 231-243 (2003).
- [Kools1995] J. C. S. Kools, Effect of energetic particle bombardment during sputter deposition on the properties of exchange-biased spin-valve multilayers, *J. Appl. Phys.* **77**, 2993-2998 (1995).
- [Kubler2007] C. Kubler, H. Ehrke, R. Huber, R. Lopez, A. Halabica, R. F. Haglund and A. Leitenstorfer, Coherent structural dynamics and electronic correlations during an ultrafast insulator-to-metal phase transition in VO<sub>2</sub>, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 116401 (2007).
- [Kyuno1996] K. Kyuno, F.-G. Ha, R. Yamamoto and S. Asano, Theoretical study on the strain dependence of the magnetic anisotropy of X/Co (X=Pt, Cu, Ag, and Au) metallic multilayers, *J. Appl. Phys.* **79**, 7084-7089 (1996).
- [Lacheisserie1999] E. Du Tremolet De Lacheisserie, Magnétisme - Tome 1, Fondements, ISBN : 2-86883-463-9 (1999), Magnétisme - Tome 2, Matériaux et applications, ISBN : 9782868834645, *Edp Sciences* (1999).
- [Lalieu2019] M. L. M. Lalieu, R. Lavrijsen and B. Koopmans, Integrating all-optical switching with spintronics, *Nat. Commun.* **10**, 110 (2019).
- [Landau1992] L. Landau and E. Lifshitz, On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies, *Reprinted from Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion* **8**, Part 2, 153 (1935), *Perspectives in Theoretical Physics*, Pergamon (1992).

- [Lattery2018] D. M. Lattery, J. Zhu, D. Zhang, J.P. Wang, P. A. Crowell and X. Wang, Quantitative analysis and optimization of magnetization precession initiated by ultrafast optical pulses, *Appl. Phys. Lett.* **113**, 162405 (2018).
- [LeBoité1988] M. G. Le Boité, A. Traverse, L. Nénot, B. Pardo and J. Corno, Characterization of ion-beam mixed multilayers via grazing x-ray reflectometry, *J. Mater. Res.* **3**, 1089 (1988).
- [Lee2013] T. Y. Lee, C. Y. Won, S. S. Dong, H. L. Sang and S. R. Lee, Effects of Co layer thickness and annealing temperature on the magnetic properties of inverted [Pt/Co] multilayers, *J. Appl. Phys.* **114**, 173909 (2013).
- [Lee2013a] T. Y. Lee, S. S. Dong, S. H. Lim and S. R. Lee, High post-annealing stability in [Pt/Co] multilayers, *J. Appl. Phys.* **113**, 216102 (2013).
- [Lei2011] N. Lei, S. Park, Ph. Lecoeur, D. Ravelosona, C. Chappert, O. Stelmakhovych and V. Holý, Magnetization reversal assisted by the inverse piezoelectric effect in Co-Fe-B/ferroelectric multilayers, *Phys. Rev. B* **84**, 012404 (2011).
- [Lei2013] N. Lei, T. Devolder, G. Agnus, P. Aubert, L. Daniel, J.-V. Kim, W. Zhao, T. Trypiniotis, R. P. Cowburn, C. Chappert, D. Ravelosona and P. Lecoeur, Strain-controlled magnetic domain wall propagation in hybrid piezoelectric/ferromagnetic structures, *Nat. Commun.* **4**, 1378 (2013).
- [Lemerle1998] S. Lemerle, J. Ferré, C. Chappert, V. Mathet, T. Giamarchi and P. Le Doussal, Domain Wall Creep in an Ising Ultrathin Magnetic Film, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 849 (1998).
- [Levy1996] A. Levy, M. Kotrla, Theory and Simulation of Crystal Growth, *J. Phys. Cond. Matter.* **9**, 299-344 (1996).
- [Li1954] S. H. Li, Origine de la Boussole 11. *Aimant et Boussole*, page 17 (1954).
- [Lihama2014] S. Iihama, S. Mizukami, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando and T. Miyazaki, Gilbert damping constants of Ta/CoFeB/MgO(Ta) thin films measured by optical detection of precessional magnetization dynamics, *Phys. Rev. B* **89**, 174416 (2014).
- [Lin1991] C. J. Lin, G. L. Gorman, C. H. Lee, R. F. C. Farrow, E. E. Marinero, H. V. Do, H. Notarys and C. J. Chien, Magnetic and structural properties of Co/Pt multilayers, *J. Magn. Magn. Mater.* **93**, 194 (1991).
- [Lin2011] W. Lin, N. Vernier and D. Ravelosona, Retournement de l'aimantation induit par accumulation de charge à une interface métal/isolant dans un film mince ferromagnétique, *Colloque Louis Néel* 2011.
- [Lin2013] W. Lin, N. Lei, N. Vernier, G. Agnus, J.-P. Adam, S. Eimer, T. Devolder, P. Lecoeur and D. Ravelosona, Perpendicular magnetic anisotropy in piezoelectric- and dielectric-ferromagnetic heterostructures based on Co/Pt multilayers, *Thin Solid Films* **533**, 70-74 (2013).
- [Liu2009] Y. F. Liu, J. W. Cai and S. L. He, Large perpendicular exchange bias in IrMn/CoFe/[Pt/Co] multilayers grown on a Ta/Pt buffer layer, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 115002 (2009).
- [Lindhard1963] L. Lindhard, M. Sharff and H. E. Schiott, Range concepts and heavy ions ranges, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* **33**, n° 14 (1963).
- [Leydecker2016] T. Leydecker, M. Herder, E. Pavlica, G. Bratina, S. Hecht, E. Orgiu and P. Samorì, **Flexible non-volatile optical memory thin-film transistor device with over 256 distinct levels based on an organic bicomponent blend**, *Nat. Nanotech.* **11**, 769–775 (2016).
- [Manchon2008] A. Manchon, C. Ducruet, L. Lombard, S. Auffret, B. Rodmacq, B. Dieny, S. Pizzini, J. Vogel, V. Uhlíř, M. Hochstrasser and G. Panaccione, Analysis of oxygen induced anisotropy crossover in pt/co/mox trilayers, *J. Appl. Phys.* **104**, 043914 (2008).



[Mangin1997] S. Mangin, Nucléation et propagation d'une paroi dans une nanostructure magnétique : la jonction à paroi de domaines, *Thèse de doctorat, Université Grenoble-1* (1997).

[Maruyama2009] T. Maruyama, Y. Shiota, T. Nozaki, K. Ohta, N. Toda, M. Mizuguchi, A. Tulapurkar, T. Shinjo, M. Shiraishi, S. Mizukami, Y. Ando and Y. Suzuki, Large voltage-induced magnetic anisotropy change in a few atomic layers of iron, *Nat. Nano.* **4**, 158 (2009).

[Meiklejohn1962] W. H. Meiklejohn, Exchange Anisotropy - A Review, *J. Appl. Phys.* **33**, 1328 (1962).

[Metaxas2007] P. J. Metaxas, J. P. Jamet, A. Mougin, M. Cormier, J. Ferré, V. Baltz, B. Rodmacq, B. Dieny and R. L. Stamps, Creep and Flow Regimes of Magnetic Domain-Wall Motion in Ultrathin Pt/Co/Pt Films with Perpendicular Anisotropy, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217208 (2007).

[Miron2009] I. M. Miron, P. J. Zermatten, G. Gaudin, S. Auffret, B. Rodmacq and A. Schuhl, Domain wall spin torquemeter, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 137202 (2009).

[Misukami2015] S. Mizukami, Fast Magnetization Precession and Damping for Magnetic Films with High Perpendicular Magnetic Anisotropy, *J. Magn. Soc. Jpn.* **39**, 1-7 (2015).

[Miyazaki1995] T. Miyazaki and N. Tezuka, Giant Magnetic Tunneling Effect in Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe Junction, *J. Magn. Magn. Mat.* **139**, L231 (1995).

[Moodera1999] J. Moodera and G. Mathon, Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 248 (1999).

[Moreau2016] 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. *Nat. Nanotech.* **11**, 444 (2016).

[Moritz2005] J. Moritz, S. van Dijken and J. M. D. Coey, Magnetization reversal in perpendicular exchange-biased multilayers, *Eur. Phys. J. B - Condensed Matter and Complex Systems* **45**, 191–195 (2005).

[Moriya1960] T. Moriya, Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism, *Phys. Rev.* **120**, 91-98 (1960).

[Nakajima1998] N. Nakajima, T. Koide, T. Shidara, H. Miyauchi, H. Fukutani, A. Fujimori, K. Iio, T. Katayama, M. Nývlt and Y. Suzuki, Perpendicular Magnetic Anisotropy Caused by Interfacial Hybridization via Enhanced Orbital Moment in Co/Pt Multilayers: Magnetic Circular X-Ray Dichroism Study, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5229 (1998).

[Nasakina2016] E. O. Nasakina, M. A. Sevostyanov, A. B. Mikhaylova, A. S. Baikin, K. V. Sergienko, A. V. Leonov and A. G. Kolmakov, Formation of alpha and beta tantalum at the variation of magnetron sputtering conditions, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* **110**, 012042 (2016).

[Navid2012] A. A. Navid and A. M. Hodge, Nanostructured alpha and beta tantalum formation - Relationship between plasma parameters and microstructure, *Mater. Sci. Eng. A* **536**, 49-56 (2012).

[Néel1954] L. Néel, Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation, *Journal de Physique et le Radium* **15**, 22539 (1954).

[Neilinger 2018] P. Neilinger, T. Ščepka, M. Mruczkiewicz, J. Dérer, D. Manca, E. Dobročka, A.S. Samardak, M. Grajcar and V. Cambel, Ferromagnetic resonance study of sputtered Pt/Co/Pt multilayers, *Appl. Surf. Sci.* **461**, 202-205 (2018).

[Ono1999] T. Ono, H. Miyajima, K. Shigeto, K. Mibu, N. Hosoi and T. Shinjo, Propagation of a Magnetic Domain Wall in a Submicrometer Magnetic Wire, *Science* **284**, 468 (1999).

[Oguz2008] K. Oguz, P. Jivrajka, M. Venkatesan, G. Feng and J. M. D. Coey, Magnetic dead layers in sputtered Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> films, *J. Appl. Phys.* **103**, 07B526 (2008).

[Okamoto2005] S. Okamoto, T. i Watanabe, K. Akiyama, S. Kaneko, H. Funakubo and S. Horita, Epitaxial Pt Films with Different Orientations Grown on (100) Si Substrates by RF Magnetron Sputtering, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, 5102 (2005).

[Park1997] C. M. Park and K. H. Shin, Reduction of interlayer coupling in NiFeCo/Cu/NiFeCo/FeMn spin valve structures by lowering argon sputtering pressure. *Appl. Phys. Lett.* **70**, 776-778 (1997).

[Parkin1990] S. S. P. Parkin, N. More and K. P. Roche, Oscillations in Exchange Coupling and Magnetoresistance in Metallic Superlattice Structures - Co/Ru, Co/Cr and Fe/Cr, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).

[Parkin1991] S. S. P. Parkin, Systematic Variation of the Strength and Oscillation Period of Indirect Magnetic Exchange Coupling through the 3d, 4d, and 5d Transition Metals, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3598 (1991).

[Parkin1991a] S. S. P. Parkin and D. Mauri, Spin engineering: Direct determination of the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida far-field range function in ruthenium, *Phys. Rev. B.* **44**, 7131-7134 (1991).

[Parkin2008] S. S. P. Parkin, M. Hayashi and L. Thomas, Magnetic Domain-Wall Racetrack Memory, *Science* **320**, 190 (2008)

[Pfister1966] J. C. Pfister, Rôle des phénomènes de canalisation dans la pénétration des ions dans les cristaux, *Journal de Physique* **27**, 253 (1966).

[Pizzini2006] S. Pizzini, Structure, magnétisme local et dynamique de l'aimantation de couches minces couplées étudiés par Spectroscopie d'Absorption X et effet Kerr magnéto-optique, *Habilitation à diriger des recherches, Université Joseph Fourier Grenoble – I* (2006).

[Quinsa2017] M. Quinsat, Y. Ootera, T. Shimada, M. Kado, S. Hashimoto, H. Morise, S. Nakamura and T. Kondo, Dzyaloshinskii-Moriya interaction in Pt/Co/Pt films prepared by chemical vapor deposition with various substrate temperatures, *AIP Advances* **7**, 056318 (2017).

**[Rangra2021] A. Rangra**, Fabrication and characterization of flexible strain sensors based on 1D nanostructures with cross-linked gold nanoparticles, *Ph.D. thesis, INSA de Toulouse* (2021).

[Ravelosona2001] D. Ravelosona, C. Chappert, V. Mathet and H. Bernas, Chemical order induced by ion irradiation in FePt (001) film, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 236 (2001).

[Ravelosona2001a] D. Ravelosona, T. Devolder, H. Bernas, C. Chappert, V. Mathet, D. Halley, Y. Samson, B. Gilles and A. Marty, Magnetic properties of irradiated highly anisotropic materials, *IEEE Trans. Magn.* **37**, 1643 (2001).

[Ravelosona2002] D. Ravelosona, C. Chappert, H. Bernas, D. Halley, Y. Samson, A. Marty, Chemical ordering at low temperatures in FePd Films, *J. Appl. Phys.* **91**, 8082 (2002).

[Ravelosona2009] D. Ravelosona, Dynamics of Domain Wall Motion in Wires with Perpendicular Anisotropy, in book: *Nanoscale Magnetic Materials and Applications*, J. P. Liu, E. Fullerton, O. Gutfleisch and D. J. Sellmyer (Eds.), p. 185, *Springer* (2009).

[Rettner2002] C. T. Rettner, S. Anders, J. E. E. Baglin, T. Thomson and B. D. Terris, Characterization of the magnetic modification of Co/Pt multilayer films by He<sup>+</sup>, Ar<sup>+</sup>, and Ga<sup>+</sup> ion irradiation, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 279 (2002).

[Roda2011] C. Roda Neve and J. P. Raskin, Nonlinear Properties of Si-based substrates for wireless systems and SoC integration, *ECS Trans.* **35**, 169 (2011).

[Rohan2014] J. F. Rohan, M. Hasan, S. Patil, D. P. Casey and T. Clancy, Energy Storage: Battery Materials and Architectures at the Nanoscale, ISBN: 978-953-51-1218-1, InTech, DOI: 10.5772/57139 (2014).

[Ruderman1954] M. A. Ruderman and C. Kittel, Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons, *Phys. Rev.* **96**, 99-102 (1954)

[Ryu2013] K. S. Ryu, L. Thomas, S. H. Yang and S. Parkin, Chiral spin torque at magnetic domain walls, *Nat. Nanotech.* **8**, 527 (2013).

[Ryu2019] J. Ryu, C. O. Avci, S. Karube, M. Kohda, G. S. D. Beach and J. Nitta, Crystal orientation dependence of spin-orbit torques in Co/Pt bilayers, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 142402 (2019).

[Saitoh2006] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima and G. Tatara, Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 182509 (2006).

[Sakamaki2012] M. Sakamaki, K. Amemiya, M. O. Liedke, J. Fassbender, P. Mazalski, I. Sveklo and A. Maziewski, Perpendicular magnetic anisotropy in a Pt/Co/Pt ultrathin film arising from a lattice distortion induced by ion irradiation, *Phys. Rev. B* **86**, 024418 (2012).

[Sanchez 2010] F. G. Sanchez, H. Szabolcs, A.P. Mihai, L. Vila, A. Marty, J.-P. Attané, J.-C. Toussaint and L.D. Buda-Prejbeanu, Effect of crystalline defects on domain wall motion under field and current in nanowires with perpendicular magnetization, *Phys. Rev. B* **81**, 134408 (2010).

[Schellekens2012] A.J. Schellekens, A. van den Brink, J.H. Franken, H.J.M. Swagten and B. Koopmans, Electric-field control of domain wall motion in perpendicularly magnetized materials, *Nat. Commun.* **3**, 847 (2012).

[Slonczewski1996] J. C. Slonczewski, Current-driven excitation of magnetic multilayers, *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1-L7 (1996).

[Spezzani2014] C. Spezzani, E. Ferrari, E. Allaria, F. Vidal, A. Ciavardini, R. Delaunay, F. Capotondi, E. Pedersoli, M. Coreno, C. Svetina, L. Raimondi, M. Zangrando, R. Ivanov, I. Nikolov, A. Demidovich, M. B. Danailov, H. Popescu, M. Eddrief, G. De Ninno, M. Kiskinova and M. Sacchi, Magnetization and Microstructure Dynamics in Fe/MnAs/GaAs (001): Fe Magnetization Reversal by a Femtosecond Laser Pulse, *Phys. Rev. Lett* **113**, 247202 (2014).

[Sreemany2006] M. Sreemany and S. Suchitra, Effect of substrate temperature and annealing temperature on the structural, electrical and microstructural properties of thin Pt films by rf magnetron sputtering, *Appl. Surf. Sci.* **253**, 2739-2746 (2006).

[Stoner1948] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys, *Phil. Trans. R. Soc. A Philos. Trans. R. Soc. A-Math. Phys. Eng. Sci.* **240**, 599–642 (1948).

[Song2013] H. S. Song, K. D. Lee, J. W. Sohn, S. H. Yang, S. S. P. Parkin, C. Y. You and S. C. Shin, Relationship between Gilbert damping and magneto-crystalline anisotropy in a Ti-buffered Co/Ni multilayer system, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 022406 (2013).

[Stillrich2010] H. Stillrich, C. Menk, R. Frömter and H. P. Oepen, Magnetic anisotropy and spin reorientation in Co/Pt multilayers: Influence of preparation, *J. Magn. Magn. Mater.* **322**, 1353-1356 (2010).

[Sud2021] A. Sud, S. Tacchi, D. Sagkovits, C. Barton, M. Sall, L. H. Diez, E. Stylianidis, N. Smith, L. Wright, S. Zhang, X. Zhang, D. Ravelosona, G. Carlotti, H. Kurebayashi, O. Kazakova and M. Cubukcu, Tailoring interfacial effect in multilayers with Dzyaloshinskii–Moriya interaction by helium ion irradiation, *Sci. Rep.* **11**, 23626 (2021).

[Tang2017] X. L. Tang, Y. Yu, R. Liu, S. Hua, H. W. Zhang, Z. Y. Zhong and Y. L. Jing, Ultra-low-pressure sputtering to improve exchange bias and tune linear ranges in spin valves, *J. Magn. Magn. Mater.* **429**, 65-68 (2017).

[Tao2012] Z. Tao, T.-R. T. Han, S. D. Mahanti, P. M. Duxbury, F. Yuan, C.-Y. Ruan, K. Wang and J. Wu, Decoupling of structural and electronic phase transitions in VO<sub>2</sub>, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 166406 (2012).

- [Thevenard2013] L. Thevenard, J.-Y. Duquesne, E. Peronne, H. J. von Bardeleben, H. Jaffres, S. Ruttala, J.-M. George, A. Lemaître and C. Gourdon, Irreversible magnetization switching using surface acoustic waves, *Phys. Rev. B* **87**, 144402 (2013).
- [Thiele1995] J. Thiele, Structure et propriétés magnétiques de couches minces de cobalt sur la face (111) du platine. *Thèse de doctorat, Université Paris XI* (1995).
- [Thomas2007] L. Thomas, M. Hayashi, X. Jiang, R. Moriya, C. Rettner and S. Parkin, Resonant Amplification of Magnetic Domain-Wall Motion by a Train of Current Pulses, *Science* **315**, 5818 (2007).
- [Thomson1856] W. Thomson, On the Electro-Dynamic Qualities of Metals: Effects of Magnetization on the Electric Conductivity of Nickel and of Iron, *Proceedings of the Royal Society of London* **8**, 546-550 (1856-1857).
- [Uchida2021] K. Uchida, Transport phenomena in spin caloritronics, *Proc. Jpn. Acad., Ser. B* **97** (2021).
- [TsujiKawa2009] M. Tsujikawa and T. Oda, Finite Electric Field Effects in the Large Perpendicular Magnetic Anisotropy Surface Pt/Fe/Pt(001): A First-Principles Study, *Phys Rev. Lett.* **102**, 247203 (2009).
- [Velmukar2016] T. Vemulkar, R. Mansell, A. Fernández-Pacheco and R. P. Cowburn, Toward Flexible Spintronics: Perpendicularly Magnetized Synthetic Antiferromagnetic Thin Films and Nanowires on Polyimide Substrates, *Adv. Funct. Mater.* **26**, 4704–4711(2016).
- [Vieu2002] C. Vieu, J. Gierak, H. Launois, T. Aign, P. Meyer and all, Modifications of magnetic properties of Pt/Co/Pt thin layers by focused gallium ion beam irradiation, *J. Appl. Phys.* **91**, 3103 (2002).
- [Watanabe2016] K. Watanabe, S. Fukami, H. Sato, F. Matsukura and H. Ohno, Magnetic Properties of CoFeB–MgO Stacks with Different Buffer-Layer Materials (Ta or Mo) *IEEE Trans. Magn.* **52**, 3400904 (2016).
- [Wegrowe1999] J.E. Wegrowe, D. Kelly, Y. Jaccard, Ph Guittienne and J.-Ph Ansermet, Current-Induced Magnetization Reversal in Magnetic Nanowires, *Europhys. Lett.* **45**, 626 (1999).
- [Wei2019] G. Wei, X. Lin, Z. Si, N. Lei, Y. Chen, S. Eimer and W. Zhao, Phase-transition-induced large magnetic anisotropy change in VO<sub>2</sub>/(Co/Pt)<sub>2</sub> heterostructure, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 012407 (2019).
- [Weisheit2007] M. Weisheit, S. Fähler, A. Marty, Y. Souche, Ch. Poinignon and D. Givord, Ferromagnets Electric Field-Induced Modification of Magnetism in Thin-Film Ferromagnets, *Science* **315**, 349 (2007).
- [Wilson1973] R. G. Wilson and G. R. Brewer, Ion beams, *Wiley Inter Science* (1973).
- [Woo2014] S. Woo, M. Mann, A. J. Tan, L. Caretta and G. S. D. Beach, Enhanced spin-orbit torques in Pt/Co/Ta heterostructures, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 212404 (2014).
- [Wu2001] Y. E. Wu, C. W. Su, C. S. Shen and M. T. Lin, Comparative Study in Magnetic Properties of Co Ultrathin Films on Flat and Sputtered Pt(111) Surfaces, *Chin. J. Phys.* **39**, 182 (2001).
- [Xie2006] Y. N. Xie and J. A. Blackman, Theory of enhanced magnetic anisotropy induced by Pt adatoms on two-dimensional Co clusters supported on a Pt(111) substrate, *Phys. Rev. B* **74**, 054401 (2006).
- [Xiong2022] D. Xiong, Y. Jiang, K. Shi, A. Du, Y. Yao, Z. Guo, D. Zhu, K. Cao, S. Peng, W. Cai, D. Zhu and W. Zhao, Review: Antiferromagnetic spintronics: An overview and outlook, *Fundamental Research* **2**, 522–534 (2022).
- [Xu2011] X. Xu, J. W. Lee, G. Ardila, M. Mouis, R. Songmuang, R. Hinchet, T. Baron, L. Montès and A. Potié, NEMS nanostructures with enhanced piezoresistive and piezoelectric properties. Application to sensor devices and energy harvesting, *6th IEEE Intern. Conf. on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems, Kaohsiung, Taiwan*, pp. 1064-1066 (2011).

[Xu2019] K. Xu, M. H. Weber, Y. Cao, W. Jiang, D. J. Edwards, B. R. Johnson and J. S. McCloy, Ion irradiation induced changes in defects of iron thin films: electron microscopy and positron annihilation spectroscopy, *J. Nuclear Mater.* **526**, 151774 (2019).

[Yakushiji2010] K. T. Yakushiji, H. Saruya, A. Kubota, T. Fukushima, S. Nagahama, S. Yuasa and K. Ando, Ultrathin Co/Pt and Co/Pd superlattice films for MgO-based perpendicular magnetic tunnel junctions, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 232508 (2010).

[Yakushiji2016] K. Yakushiji, H. Kubota, A. Fukushima and S. Yuasa. Perpendicular magnetic tunnel junction with enhanced anisotropy obtained by utilizing an Ir/Co interface, *Appl. Phys. Express* **9**, 013003 (2016).

[Yıldırım2021] G. Yıldırım, A. Borzì, C. V. Falub, H. Rohrmann, D. Jaeger, M. Rechsteiner, D. Schneider, A. Neels, H. J. Hug, M. A. Marioni, Tuning the microstructure of the Pt layers grown on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) by different sputtering methods, *Scr. Mater.* **194**, 113689 (2021).

[Yosida1957] K. Yosida, Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys, *Phys. Rev.* **106**, 893-898 (1957).

[Yu2017] H. Yu, S. D. Brechet and J. P. Ansermet, Spin caloritronics, origin and outlook, *Phys. Lett. A* **381**, 825-837 (2017).

[Zhang1993] B. Zhang, K. M. Krishnan, C. H. Lee and R. F. C. Farrow, Magnetic anisotropy and lattice strain in Co/Pt multilayers, *J. Appl. Phys.* **73**, 6198 – 6200 (1993).

[Zhang2015] X. Zhang, G. Zhao, H. Fangohr, J. Ping Liu, W. X. Xia, J. Xia and F. J. Morvan, Skyrmion-skyrmion and skyrmion-edge repulsions in skyrmion-based racetrack memory, *Sci. Rep.* **5**, 7643 (2015).

[Zhang2017] B. Zhang, A. Cao, J. Qiao, M. Tang, K. Cao, X. Zhao, S. Eimer, Z. Si, N. Lei, Z. Wang, X. Lin, Z. Zhang, M. Wu and W. Zhao, Influence of heavy metal materials on magnetic properties of Pt/Co/heavy metal tri-layered structures *Appl. Phys. Lett.* **110**, 012405 (2017).

[Zhang2018] Y. Zhang, X. Zhang, N. Vernier, Z. Z. Zhang, G. Agnus, J. R. Coudeville, X. Y. Lin, Y. Zhang, Y. G. Zhang, W. Zhao and D. Ravelosona, Domain-Wall Motion Driven by Laplace Pressure in CoFeB/MgO Nanodots with Perpendicular Anisotropy. *Phys. Rev. Appl.* **9**, 064027 (2018).

## Résumé détaillé

Les mises au point de vanes de spins et de jonctions tunnel magnétiques ont constitué des étapes importantes dans le développement de l'électronique de spins. Au lieu d'un champ magnétique, il est devenu envisageable de modifier l'aimantation par un courant polarisé en spin *via* le couple de transfert de spin, ce qui offre des perspectives d'application considérables. Parkin *et al.* ont proposé une structure de mémoires « Racetrack memory », consistant en une chaîne de domaines magnétiques déplaçable et pilotable par un courant et ouvrant la voie à une architecture 3D de mémoires magnétiques [Thomas2007, Parkin2008]. Dans les recherches actuelles, des empilements de couches associant différentes propriétés sont le plus souvent utilisés. Une alternative concerne des matériaux multiferroïques artificiels, en nanocomposites ou en structures 3D, associant des composantes ferromagnétiques et d'autres composantes ferroélectriques, piézoélectriques, magnétostrictifs ou photostrictifs. L'objectif est de pouvoir manipuler l'aimantation de la composante magnétique du composite, en agissant sur une autre composante par un champ électrique, une déformation, de la lumière ou autres leviers. Pour des applications, il faut intégrer cette électronique de spins dans des nano-dispositifs (nano-capteurs, nano-moteurs, nano-actionneurs) sur différents substrats rigides ou flexibles [Xu2011, Ghibaudo2014, Rohan2014].

Le cobalt a un rôle particulier dans le magnétisme, aussi bien pour ses propriétés que pour les propriétés qu'il induit dans des composés et alliages comme CoFeB, CoPt, *etc.* Etant de structure hexagonale, le cobalt présente une anisotropie magnéto-cristalline uniaxiale, intrinsèquement plus forte que l'anisotropie magnéto-cristalline cubique de Fe et de Ni d'un et deux ordres de grandeur, respectivement. La richesse de Co réside également dans sa forte interaction avec son environnement, en particulier l'hybridation de liaisons avec l'oxygène et un fort couplage spin-orbite avec un atome de métal lourd. Ainsi, une couche ultramince ( $< 1$  nm) de Co peut présenter une anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) qui est le plus souvent requise pour des applications en électronique de spins. En plus, l'interface Co/métal lourd peut induire un couplage de super-échange antisymétrique [Quinsat2017], interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) [Dzyaloshinsky1958, Moriya1960], et conduit à une texture d'aimantations chirale, de type parois de domaines de Néel et skyrmions [Jung2021].

Ce manuscrit rassemble des travaux que j'ai menés sur des couches ultraminces à partir de la brique de base en Pt/Co. Le cœur des structures va de Pt/Co/Pt à Pt/Co/oxyde et Pt/Co/métal

lourd, ainsi que des multicouches de Pt/Co. Après la mise en place de moyens de croissance (pulvérisation cathodique), de traitement (recuit et irradiation ionique) et caractérisation (magnéto-optique Kerr), l'attention va porter sur l'optimisation des conditions d'élaboration des couches et l'obtention de la PMA, ce sur divers substrats rigides et souples. La deuxième étape est d'explorer des possibilités de modifier et contrôler la PMA, notamment par biais de couches tampon et de couverture autour de Co. L'échange interfacial entre Co et un oxyde ou des atomes de métal lourd va être sondé par microscopie Kerr en analysant la propagation de parois de domaines magnétiques, en vue d'identifier la DMI. Le manuscrit est structuré en six chapitres, ainsi qu'une introduction et des conclusions et perspectives, suivant les étapes et avec les objectives citées ci-dessus.

Dans l'**Introduction**, je rappelle des développements clé en électronique de spins et souligne des structures et aspects impliquant le cobalt. Je retrace à grands traits ma carrière en recherche, le contexte personnel qui m'a conduit à ce champ de recherches et en particulier mon parcours depuis sept dernières années à l'Université BEIHANG (Beijing, Chine), ainsi qu'aux deux annexes de BEIHANG, Hefei Innovation Research Center (Hefei, province Anhui, Chine) et Beihang Qingdao Institut, (Qingdao, province Shandong, Chine).

Dans le **Chapitre I**, des éléments du magnétisme utiles et relatifs à mes travaux sont présentés. Les différentes contributions à l'énergie magnétique d'un système ferromagnétique sont décrites : énergie Zeeman relative au champ magnétique externe, énergie d'échange et énergies d'anisotropie. L'anisotropie est due à la forme (effet magnéto-statique), à la structure (effet magnéto-cristallin), à la déformation (magnéto-élastique) et, dans le cas d'un film, à la surface et aux interfaces. Un regard particulier est jeté sur des échanges indirects ou super-échanges tels qu'échange Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) et échange antisymétrique Dzyaloshiinskii-Moryia (DMI), particulièrement importants dans des couches ultraminces ( $< 1$  nm). Je décris ensuite les principales caractéristiques magnétiques issues des cycles d'hystérésis. Le dernier paragraphe concerne des principes dans la nucléation et la propagation de domaines magnétiques et des observations de domaines par microscopie Kerr.

Le **Chapitre II** expose des techniques de croissances, de traitement et de caractérisation des couches minces que j'ai utilisées au cours de mes travaux. Je parcours diverses méthodes en pulvérisation cathodique, avant de détailler la pulvérisation cathodique magnétron que nous avons utilisée. Après la description rapide de principes de mode de croissance et de traitement thermique, j'insiste sur l'irradiation de couches minces par ions légers, technique que je mets en œuvre de

façon récurrente. Un paragraphe est consacré à des techniques usuelles dont j'ai eu constamment besoin pour caractériser les échantillons : diffraction des rayons X, réflectivité des rayons X, microscopie à force atomique et microscopie électronique en transmission associée à l'analyse locale sensible aux éléments, fluorescence X (EDS) et imagerie de diffusion à grands angles (HAADF). Je décris comment exploiter l'effet magnéto-optique Kerr (MOKE) de diverses façons pour la magnétométrie, pour mesurer les composantes polaire, longitudinale et transverse de l'aimantation, visualiser les domaines magnétiques en microscopie Kerr et analyser la dynamique de l'aimantation résolue en temps (Tr-MOKE). Enfin, je présente la magnétométrie à échantillon vibrant (VSM), un outil que j'utilise quotidiennement.

Le **Chapitre III** concerne des développements expérimentaux que j'ai réalisés, essentiellement depuis 2015 dans trois instituts de recherche en Chine, IRC (Université BEIHANG, Beijing), NSTC (Hefei, province Anhui) et Beihang Qingdao Institut, (Qingdao, province Shandong). Il s'agit de mettre en place des plateformes de croissance par pulvérisation cathodique, de traitement post-croissance par irradiation ionique et de caractérisation magnétiques par MOKE. En comparaison avec le système installé à l'IEF (Orsay), je détaille la pulvérisation cathodique magnétron installée à NSTC (Hefei, province Anhui, Chine). De même, à partir du système d'irradiation ionique de l'IEF dont j'ai contribué au développement, je décris le système d'irradiation avec de nouvelles performances mis en place à NSTC à Hefei, en relation avec des sociétés partenaires Spin-ion technologies (Palaiseau) et Dreebit (Dresdes, Allemagne). En appuyant toujours sur mes acquis en France, la simulation du faisceau d'ions a été implantée avec la Société « Accelerators and Cryogenic Systems » (ACS, Orsay), pour optimiser le faisceau d'ions et les conditions d'irradiation. Pour la magnétométrie, j'ai choisi de décrire un montage LP-MOKE (MOKE longitudinal et polaire simultanés) et un microscope Kerr polaire parmi de nombreuses installations réalisées, entre autres MOKE *in situ* et Tr-MOKE.

Nous arrivons à la partie d'élaboration et de caractérisation de couches minces dans le **Chapitre IV**. Cette partie est dédiée à l'étude d'empilements Pt/Co/Pt que j'ai réalisés. La première étape a été de trouver les paramètres optimaux de dépôts et d'empilements pour obtenir la PMA sur différents substrats (amorphes, cristallins, flexibles), afin de pouvoir les transposer ultérieurement dans des dispositifs d'application. J'analyse d'abord l'impact de substrats sur la PMA des couches, en testant de nombreux types de substrats qui ont un avantage pour l'épitaxie ou un intérêt industriel : Si/SiO<sub>2</sub>, MgO, SrTiO<sub>3</sub>, ZnO, GaN, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> et YSZ (zirconia dopé yttrium). J'examine ensuite l'effet de couche tampon sur la PMA. Je montre en particulier qu'une



couche tampon de Ta est propice pour la texturation de la première couche de Pt en orientation (111), ce qui entraîne une bonne texture de couches de Co et Pt par la suite. La PMA a été ainsi obtenu grâce au buffer de Ta dans les empilements Pt/Co/Pt sur tous les types de substrats testés. L'influence de la pression et de la température de croissance est également discutée.

Un paragraphe est consacré à la nucléation et à la propagation de domaines magnétiques par microscopie Kerr qui est très complémentaire à la magnétométrie. En effet, pour des cycles d'hystérésis proches de deux échantillons, les modes de renversement de l'aimantation et de propagation de domaines peuvent être très différents. Je montre qu'avec des conditions de mesure similaires et en fonction de la structure des empilements, les domaines peuvent avoir des formes quasi-rondes ou très irrégulières, avec une propagation homogène et isotrope ou dendritique. Ainsi, le renversement de l'aimantation peut être dominé par la nucléation et une rapide propagation de domaines inversés ou par une multitude de nucléation avec une propagation limitée spatialement. L'imagerie Kerr nous révèle des centres de piégeages pour les domaines qui sont liés aux défauts structuraux dans les films.

Je présente le dépôt d'empilements Ta/Pt/Co/Pt sur substrats souples, Kapton, PET (Polytéréphtalate d'éthylène) et PEN (Polynaphtalate d'éthylène), ce qui constitue un enjeu important pour des applications. Il faut souligner que l'élaboration sur substrats souples ne peut se faire qu'à la température ambiante et que de même un recuit post-croissance n'est pas possible non plus. Après avoir obtenu la PMA des empilements sur substrats souples et analysé la formation de domaines magnétiques, mon objectif a été de modifier et d'améliorer la PMA des empilements. J'ai employé la technique alternative et innovante d'irradiation par ions légers. Je montre que la coercivité des empilements peut être réduite par irradiation d'ions  $\text{He}^+$ , jusqu'au basculement de l'axe facile d'aimantation dans le plan avec une forte dose d'ions. L'effet sur des défauts dans les films est visible avec un abaissement presque de moitié du seuil du champ de dépiégeage de domaines magnétiques, de sorte que le régime de fluage est atteint rapidement avec le champ par rapport au cas de l'échantillon natif. L'irradiation permet ainsi de diminuer des défauts natifs dans les empilements de façon drastique.

Le **Chapitre V** expose différentes voies que j'ai explorées pour modifier et contrôler la PMA des empilements à base de Pt/Co. La première méthode originale est d'utiliser des matériaux à transition de phases, à l'instar de  $\text{VO}_2$  qui présente une transition d'isolant monoclinique en métal hexagonal autour de 340 K. Nous espérons que la contrainte interfaciale induite entre  $\text{VO}_2$  et Pt/Co

lors de la transition permet de moduler la PMA. Une hétérostructure  $\text{VO}_2/[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  a été réalisée sur un substrat de  $\text{TiO}_2(100)$ .  $\text{VO}_2$  est d'abord déposé par ablation laser. Une bonne transition de phases de la couche tampon  $\text{VO}_2$  de 20 nm d'épaisseur a été vérifiée par un cycle d'hystérésis thermique de sa résistance électrique. La surface de la couche de  $\text{VO}_2$  présente une faible rugosité inférieure à 1 nm, ce qui permet une reprise de croissance de  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  par pulvérisation cathodique. L'effet de la transition de  $\text{VO}_2$  sur le magnétisme de  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  a été mis en évidence par des mesures de la résistance Hall anormale : un cycle d'hystérésis de la résistance Hall en fonction du champ magnétique a été observé avant la transition à 300 K, alors que l'hystérésis disparaît après la transition à 360 K. En même temps, la PMA de l'hétérostructure est présente à 300 K et disparaît à 360 K. Afin d'identifier de façon certaine la transition de  $\text{VO}_2$  comme origine des changements en résistance Hall et PMA, nous avons séparé  $\text{VO}_2$  et  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  par l'insertion d'une couche tampon de Ta de 3 nm et constaté qu'il n'y a plus de variation notable de la PMA en température. Fort de ces résultats encourageants, nous avons perfectionné et augmenté l'effet de  $\text{VO}_2$  par un dépôt à chaud (373 K) des couches magnétiques  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  sur  $\text{VO}_2$ . Le procédé permet de pré-contraindre les couches de  $[\text{Pt}/\text{Co}]_2$  lors du refroidissement jusqu'à l'ambiante, lorsque la structure de  $\text{VO}_2$  passe de l'hexagonal au monoclinique. Ce procédé pré-précontraint a permis d'accroître grandement la variabilité en température de la PMA par rapport à l'échantillon fait à l'ambiante.

La seconde méthode pour modifier la PMA de Pt/Co/Pt est d'utiliser une couche tampon d'oxyde piézoélectrique ou diélectrique. Les structures piézoélectriques / ferromagnétiques sont intéressantes pour des applications, si une déformation piézoélectrique par application d'une tension peut être transférée à la couche magnétique et induire une modification de sa PMA par effet magnétostrictif. Nous avons étudié les modifications apportées par l'utilisation d'une couche tampon piézoélectrique PMN-PT ( $0.7(\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)-0.3(\text{PbTiO}_3)$ ) sur Pt/Co/Pt. Puis, l'étude est étendue à des couches diélectriques ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{HfO}_2$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  et  $\text{TiO}_2$ ). Nos résultats montrent que la PMA de Pt/Co/Pt est fortement influencée par la présence de la couche d'oxyde. Enfin, nous avons également montré que l'anisotropie peut aussi être modifiée par l'ajout d'une couche d'oxyde ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{HfO}_2$ ) en couverture de Pt/Co/Pt.

La troisième méthode pour modifier la PMA est assez utilisée dans de nombreuses recherches. Il s'agit de multicouches de Pt/Co, en répétant la croissance de Pt/Co. La PMA change avec le nombre de répétitions et les épaisseurs des sous-couches de Pt et Co. Il s'agit de savoir si une subdivision de Co en sous-couches et la répétition ont un effet bénéfique cumulatif pour la PMA qui est issue de l'anisotropie interfaciale de Pt/Co ou au contraire un effet cumulatif pour la

génération de défauts et désordre au détriment de la PMA. Notre étude établit que la PMA est préservée dans les multicouches Pt/Co en diminuant l'épaisseur d'une sous-couche de Co jusqu'à 0.2 nm, en parallèle avec une réduction du champ coercitif. Le nombre de répétition de Pt/Co agit principalement sur la forme du cycle d'hystérésis qui dévie de la forme rectangulaire, probablement à cause de l'interaction dipolaire croissante entre sous-couches. La microscopie Kerr montre qu'il y a une multitude de défauts et de centres de piégeages conduisant à des domaines de formes irréguliers avec une propagation très inhomogène, en comparaison avec une couche simple de Pt/Co. Par conséquent, la compétition entre l'augmentation du nombre d'interfaces Pt/Co et celle de défauts structuraux d'interfaces rend la méthode de multicouches mitigée en termes de bénéfice et d'efficacité pour modifier la PMA de Pt/Co.

La dernière méthode de modifier la PMA exposée dans ce chapitre implique une étude toujours en cours sur l'effet de charges électriques à proximité de Co sur le retournement de son aimantation dans une hétérostructure Pt/Co/Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ITO. Ici, la couche de couverture de Pt et la couche ITO constituent des électrodes séparées par une couche isolante de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> de 50 nm. Grâce à la transparence de l'ITO, l'évolution de domaines magnétiques peut être suivie par microscopie Kerr. Avec une tension appliquée entre la fine couche de couverture (0.5 nm) de Pt et l'ITO, on observe que la nucléation d'un domaine avec un même champ magnétique inverse est facilitée ou empêchée selon le signe de la tension. Plus précisément, une accumulation d'électrons dans Pt de couverture à proximité de Co rend difficile le renversement de l'aimantation et la situation s'inverse avec une déplétion d'électrons. Ces résultats sont extrêmement intéressants et nous poursuivrons et approfondirons l'étude, car le contrôle de l'aimantation à l'aide d'une tension électrique, d'un champ électrique ou d'un courant constitue un formidable défi, aussi bien du point de vue de la physique fondamentale que de celui des applications potentielles [Maruyama2009, Chung2008, Lin2011].

Le **Chapitre VI** clôture cette dissertation en abordant un aspect fondamental entre le couplage d'échange entre Co et un atome lourd à fort couplage spin-orbite dans des empilements ultraminces, à savoir l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI). Dans la structure Pt/Co/Pt, les interfaces Pt/Co et Co/Pt sont le plus souvent similaires et les contributions DMI se compensent. En brisant la symétrie des interfaces autour de Co dans une structure Pt/Co/métal lourd ou Pt/Co/oxyde, la DMI est exaltée. Je débute le Chapitre VI par examiner l'impact de divers métaux sur la PMA de la structure Pt/Co/métal (W, Ta, Pd, Ru et Al) et sur la propagation de parois de domaines. La dynamique de l'aimantation a été analysée par MOKE résolue en temps sub-

picoseconde et les facteurs d'amortissement ont été déterminés. La présence de la DMI dans ces empilements est sondée en microscopie Kerr à travers la propagation de parois de domaines provoquée par un champ perpendiculaire en présence d'un champ transverse. Il faut rappeler que la présence d'un champ transverse n'affecte pas l'isotropie de la propagation d'une paroi de Bloch. Ainsi, la dissymétrie entre les vitesses de propagation de parois de domaines parallèlement et antiparallèlement à un champ transverse est révélatrice d'une texture d'aimantations chirale, de type paroi de Néel, causée par une DMI aux interfaces de Co. C'est ce que nous avons observé dans les structures Pt/Co/métal (W, Ta, Pd, Ru et Al) et je montre le cas de Pt/Co/Ru. Pour les structures Pt/Co/oxyde ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ , MgO et  $\text{RuO}_2$ ), l'élaboration par pulvérisation est difficile à cause de l'oxyde. J'ai dû adapter le protocole d'élaboration en fonction de l'oxyde : une oxydation de Al ou Mg pour obtenir une couche de  $\text{AlO}_x$  ou MgO et une croissance directe pour  $\text{RuO}_2$ . Pour la structure Pt/Co/ $\text{AlO}_x$ , je récapitule la conclusion d'une étude menée en collaboration avec le LSPM (Villetaneuse) et le LPS (Orsay) par spectroscopie Brillouin sondant des ondes de spins [Belmeguenai2015]. Les mesures ont mis en évidence d'une non-réciprocité dans les processus d'interaction entre photon et ondes de spins, dans le sens que les déplacements en fréquences anti-Stokes / Stokes, correspondant à l'annihilation / la création de magnons, ne sont plus égales en valeur absolue, ce qui atteste une chiralité de type Néel induite par la DMI dans l'échantillon. Pour la structure Pt/Co/ $\text{RuO}_2$  et en comparaison avec celle de Pt/Co/Ru, je fais une analyse par microscopie Kerr et montre que le champ DMI peut être directement déduit par la dissymétrie gauche-droite des vitesses de propagation de parois de domaine en fonction du champ transverse.

Dans le **dernier Chapitre** « Conclusions et perspectives », je récapitule les étapes et les principaux résultats de mes travaux autour du système Pt/Co et expose des perspectives. J'ai mis en place des plateformes d'élaboration, de traitements et de caractérisations de couches ultraminces (<1 nm) magnétiques pour applications spintroniques. Nous avons réussi à obtenir la PMA de Pt/Co/Pt sur des substrats variés et même souples, ce qui est fort utile pour les applications. J'ai montré que la PMA peut être modifiée de différentes manières, en variant les couches tampon ou de couverture, en changeant la pression et la température de croissance ou en multicouches de Pt/Co. La PMA a pu être modulée de façon réversible en température à l'aide d'une couche tampon de  $\text{VO}_2$ , grâce à la transition de phases de  $\text{VO}_2$ . En brisant la symétrie des interfaces autour de Co avec des structures Pt/Co/oxyde et Pt/Co/métal lourd, nous avons ouvert tout un pan de nouvelles structures où la DMI entre Co et métal lourd a pu être identifiée par microscopie Kerr. Cette étude montre que les structures à base de Pt/Co sont versatiles, riches en

propriétés et propices pour les applications. Une meilleure compréhension et maîtrise de la PMA et de la DMI dans des couches ultraminces magnétiques constituent toujours l'objectif et un défi, aussi bien sur le plan fondamental que sur le plan technologique. La recherche sur la DMI est en plein essor, en vue de générer, maîtriser et propager des états d'aimantations complexes comme skyrmions, et permettra à terme une nouvelle génération de dispositifs spintroniques [Zhang2015]. La manipulation de l'aimantation par des leviers autres que le champ magnétique est extrêmement intéressante pour les applications. L'utilisation d'un faisceau laser retient particulièrement l'attention, car elle ouvre la perspective d'une manipulation tout optique en écriture et en lecture de domaines magnétiques de façon ultra-rapide [Lalieu2019]. Un champ de recherches sur le couplage antiferromagnétique / ferromagnétique est actuellement très dynamique et prometteur. Il s'agit de parvenir à exploiter l'effet « exchange bias » dans AFM/FM de façon dynamique et réversible, pour changer le champ coercitif [Xiong2022]. Ainsi, une manipulation du renversement de l'aimantation à l'aide de la modification réversible du champ d'échange-bias peut être envisagée dans un nouveau type de mémoires EB-MRAM (Exchange Bias - Magnetic Random Access Memory). Le couplage AFM/FM est un domaine dans lequel je voudrais m'investir dans l'avenir.

## Mes contributions scientifiques

### Publications

[P1] **S. Eimer**, H. Cheng, P. Vallobra, B. Zhang and W. Zhao, Perpendicular magnetic anisotropy based spintronics devices in Pt/Co and Pt/Co/Mx/Pt stacks under different hard and flexible substrates, *IEEE Trans. Magn.*, soumis.

[P2] H. Cheng, **S. Eimer**, Y. Liu, B. Zhang, Y. Liu, Y. Xu, P. Vallobra, Z. Wang, C. Li, J. Ge, R. Xu, Y. Yao, Y. Du, X. Wang, X. Zhang, Y. Zhang, C. Zhao, W. Zhao, An integrated ultra-high vacuum system for deposition, interface regulation and characterization of atomic-scale spin multilayers, *Rev. Sci. Instrum.*, soumis.

[P3] Q. Xia, J. Qu, T. Luo, D. Zhang, J. Cui, K. Shi, H. Cheng, **S. Eimer**, H. Yang, X. Zhang, Q. Li, C. Wang, D. Zhu and W. Zhao, Enhanced spin torque efficiency in the W-CoFeB structures by metallic antiferromagnetic insertion, *Phys. Rev. Appl.*, soumis.

[P4] **S. Eimer**, H. Cheng, J. Li, X. Zhang, C. Zhao and W. Zhao, Perpendicular magnetic anisotropy based spintronics devices in Pt/Co stacks under different hard and flexible substrates, *Sci. China Inf. Sci.* **66**, 122408 (2023). <https://doi.org/10.1007/s11432-021-3371-4>

[P5] Y. Liu, H. Cheng, P. Vallobra, H. Wang, **S. Eimer**, X. Zhang, G. Malinowski, M. Hehn, Y. Xu, S. Mangin and W. Zhao, Ultrafast single-pulse switching of Tb-dominant CoTb alloy, *Appl. Phys. Lett.* **122**, 022401 (2023).  
<https://doi.org/10.1063/5.0131716>

[P6] H. Cheng, B. Zhang, Y. Xu, S. Lu, Y. Yao, R. Xiao, K. Cao, Y. Liu, Z. Wang, R. Xu, D. Xiong, Y. Wang, H. Ma, **S. Eimer**, C. Zhao and W. Zhao, Mo-based perpendicularly magnetized thin films with low damping for fast and low-power consumption magnetic memory, *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **65**, 287511 (2022).  
<https://doi.org/10.1007/s11433-021-1875-6>

[P7] Y. Jiang, X. Zhang, Y. Liu, P. Vallobra, **S. Eimer**, F. Zhang, Y. Du, F. Liu, Y. Xu and W. Zhao, Spintronic terahertz emitter with integrated electromagnetic control, *Chin. Opt. Lett.* **20**, 043201 (2022).

[P8] Y. Liu, H. Cheng, Y. Xu, P. Vallobra, **S. Eimer**, X. Zhang, X. Wu, T. Nie and W. Zhao, Separation of emission mechanisms in spintronic terahertz emitters, *Phys. Rev. B* **104**, 064419 (2021).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.104.064419>

[P9] H. Cheng, J. Chen, S. Peng, B. Zhang, Z. Wang, D. Zhu, K. Shi, **S. Eimer**, X. Wang, Z. Guo, Y. Xu, D. Xiong, K. Cao and W. Zhao, Giant Perpendicular Magnetic Anisotropy in Mo-Based Double-Interface Free Layer Structure for Advanced Magnetic Tunnel Junctions, *Adv. Electron. Mater.* **6**, 2000271 (2020).  
<https://doi.org/10.1002/aelm.202000271>

[P10] J. Hu, M. K. Kothari, **S. Eimer**, W. Zhao, H. Yu and J.-P. Ansermet, Strong temperature-dependent thermoelectric power of IrMn<sub>3</sub> thin films of different thicknesses, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 01LT01 (2020).

<https://doi.org/10.1088/1361-6463/abbbb8>

[P11] X. Zhou, N. Vernier, G. Agnus, **S. Eimer**, W. Lin and Y. Zhai, Highly anisotropic magnetic domain wall behavior in in-plane magnetic films, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 237203 (2020).

<https://doi.org/10.1103/physrevlett.125.237203>

[P12] Z. Wang, H. Cheng, K. Shi, Y. Liu, J. Qiao, D. Zhu, W. Cai, X. Zhang, **S. Eimer**, D. Zhu, J. Zhang, A. Fert and W. Zhao, Modulation of field-like spin orbit torque in heavy metal / ferromagnet heterostructure, *Nanoscale* **12**, 15246-15251 (2020). <https://doi.org/10.1039/D0NR02762F>

[P13] G. Wei, X. Lin, Z. Si, N. Lei, Y., Chen, **S. Eimer** and W. Zhao, Phase-transition-induced large magnetic anisotropy change in VO<sub>2</sub>/(Co/Pt)<sub>2</sub> heterostructure, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 012407 (2019).

<https://doi.org/10.1063/1.5058751>

[P14] B. Zhang, A. Cao, J. Qiao, M. Tang, K. Cao, X. Zhao, **S. Eimer**, Z. Si, N. Lei, Z. Wang, X. Lin, Z. Zhang, M. Wu and W. Zhao, Influence of heavy metal materials on magnetic properties of Pt/Co/heavy metal tri-layered structures, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 012405 (2017). <https://doi.org/10.1063/1.4973477>

[P15] L. Herrera Diez, F. García-Sánchez, J.P. Adam, T. Devolder, **S. Eimer**, M. S. El Hadri, A. Lamperti, R. Mantovan, B. Ocker and D. Ravelosona, Controlling magnetic domain wall motion in the creep regime in He<sup>+</sup>-irradiated CoFeB/MgO films with perpendicular anisotropy, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 032401 (2015).

<https://doi.org/10.1063/1.4927204>

[P16] M. Belmeguenai, J. P. Adam, Y. Roussigné, **S. Eimer**, T. Devolder, J.-V. Kim, S. M. Cherif, A. Stashkevich and A. Thiaville, Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly-magnetized Pt/Co/AlO<sub>x</sub> ultrathin films measured by Brillouin light spectroscopy, *Phys. Rev. B* **91**, 180405(R) (2015).

<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.180405>

[P17] T. Devolder, A. Le Goff, **S. Eimer** and J.P. Adam, Joint perpendicular anisotropy and strong interlayer exchange coupling in systems with thin vanadium spacers, *J. Appl. Phys.* **117**, 163911 (2015).

<https://doi.org/10.1063/1.4919089>

[P18] C. Deng, W. Lin, G. Agnus, D. Dragoe, S. Pierucci, A. Ouerghi, **S. Eimer**, I. Barisic, D. Ravelosona, C. Chappert and W. Zhao, Reversible Charge-Transfer Doping in Graphene due to Reaction with Polymer Residues, *J. Phys. Chem. C* **118**, 13890–13897 (2014). <https://doi.org/10.1021/jp501077t>

[P19] C. Burrowes, N. Vernier, J.-P. Adam, L. Herrera Diez, K. Garcia, I. Barisic, G. Agnus, **S. Eimer** J.-V. Kim, T. Devolder, A. Lamperti, R. Mantovan, B. Ockert, E. E. Fullerton and D. Ravelosona, Low depinning fields in Ta-CoFeB-MgO ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 182401 (2013). <https://doi.org/10.1063/1.4826439>

[P20] W. Lin, N. Lei, N. Vernier, G. Agnus, J.-P. Adam, **S. Eimer**, T. Devolder, P. Lecoeur and D. Ravelosona, Perpendicular magnetic anisotropy in piezoelectric- and dielectric-ferromagnetic heterostructures based on Co/Pt multilayers, *Thin Solid Films* **533**, 70-74 (2013). <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2012.12.107>

[P21] C. Deng, W. Lin, **S. Eimer**, D. Ravelosona, C. Chappert and W. Zhao, Raman spectroscopy study of low energy He<sup>+</sup> ion irradiation effect in graphene transferred onto SiO<sub>2</sub>, *13th IEEE Intern. Conf. Nanotech. (IEEE-NANO 2013), Beijing, China* (2013). <https://doi.org/10.1109/NANO.2013.6720857>

[P22] T. Devolder, T. Tahmasebi, **S. Eimer**, T. Hauet and S. Andrieu, Compositional dependence of the magnetic properties of epitaxial FeV/MgO thin films, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 242410 (2013).

<https://doi.org/10.1063/1.4845375>

[P23] T. Devolder, I. Barisic, **S. Eimer**, K. Garcia, J.-P. Adam, B. Ockert and D. Ravelosona, Irradiation-induced tailoring of the magnetism of CoFeB/MgO ultrathin films, *J. Appl. Phys.* **113**, 203912 (2013).

<https://doi.org/10.1063/1.4808102>

[P24] N. Vernier, J.-P. Adam, **S. Eimer**, G. Agnus T. Devolder, T. Hauet, B. Ocker, F. Garcia and D. Ravelosona, Measurement of magnetization using domain compressibility in CoFeB films with perpendicular anisotropy, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 122404 (2013). <https://doi.org/10.1063/1.4869482>

[P25] X. Joyeux, T. Devolder, J.V. Kim, Y. Gomez de la Torre, **S. Eimer** and C. Chappert, Configuration and temperature dependence of magnetic damping in spin valves, *J. Appl. Phys.* **110**, 063915 (2011). <https://doi.org/10.1063/1.3638055>

[P26] M. Wojdak, A. Braud, J. L. Doualan, R. Moncorgé, T. Wójtowicz, P. Ruterana, P. Marie, A. Colder, **S. Eimer**, L. Méchin and H. M. Ng, Infrared and visible emission from electroluminescent device based on GaN:Er, *Phys. Status Solidi C* **2**, 1035 - 1038 (2005). <https://doi.org/10.1002/pssc.200460616>

[P27] A. Colder, T. Wojtowicz, P. Marie, P. Ruterana, V. Matias, M. Mamor, A. Vantomme, **S. Eimer** and L. Méchin, Deep level transient spectroscopy and TEM analysis of defects in Eu implanted GaN, *Phys. Status Solidi C* **2**, 2450-2453 (2005). <https://doi.org/10.1002/pssc.200461504>

[P28] A. Colder, P. Marie, T. Wojtowicz, P. Ruterana, **S. Eimer**, L. Méchin, K. Lorenz, U. Wahl, E. Alves, V. Matias and M. Mamor, Characterisation of defects in rare earth implanted GaN by deep level transient spectroscopy, *Superlattices Microstruct.* **36**, 713-719 (2004). <https://doi.org/10.1016/j.spmi.2004.09.027>

[P29] N. Passilly, M. Fromager, L. Mechin, C. Gunther, **S. Eimer**, T. Mohammed-Brahim and K. Aït-Ameur, 1-D laser beam shaping using an adjustable binary diffractive optical element, *Opt. Comm.* **241**, 465-473 (2004). <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2004.07.036>

## Brevets

[B1] Logiciel de pilotage d'équipements de dépôt et d'irradiation intégré pour la réalisation de multicouches ultra-minces

Inventeurs : H. Cheng, X. Zhang, **S. Eimer**, W. Zhao

Date de dépôt : décembre 2022, en cours d'enregistrement

[B2] Nouveau design de cathode pour le dépôt cathodique

Inventeurs : **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao

Date de dépôt : juin 2022, en cours d'enregistrement

[B3] Thin film deposition equipment, physical vapor deposition apparatus and thin film deposition method (薄膜沉积设备、物理气相沉积装置以及薄膜沉积方法)

Inventeurs : H. Cheng, **S. Eimer**, C. Li, Y. Du, W. Zhao, Y. Yao, R. Xu, J. Wang, Y. Wang

Numéro de brevet : CN202111283138.3- ZL202111283138.3 (Chine)

Date de publication : 19/07/2022

[B4] A method for measuring and controlling nanocluster growth (一种用于测量和控制纳米团簇生长的方法)

Inventeurs : P. Wu, **S. Eimer**, W. Zhao Wang



Numéro de brevet : CN202111473248.6- CN114318280A - ZL202111473248.6 (Chine)

Date de publication : 12/04/2022

[B5] A Compiled Integrated Memristor (一种编译一体的忆阻器)

Inventeurs : Y. Wang, Z. Lu, H. Cheng, **S. Eimer**, W. Zhao

Numéro de brevet : CN202121604962.x - ZL 202121604962.4 (Chine)

Date de publication : 04/03/2022

[B6] Integrated processing equipment and application method of ultra-thin multilayer film (一种超薄多层膜的集成式加工设备及应用方法)

Inventeurs : W. Zhao, H. Cheng, **S. Eimer**, X. Zhang

Numéro de brevet : CN202010812789.6- CN 112048704 B (Chine)

Date de publication : 25/05/2021

## Communications orales

[O1] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Sputtering development for Nano-Spintronic stacks with perpendicular and planar magnetic anisotropy, *ICFM2022 International conference on Frontier Materials, Zhuhai (China), online*, Mai 28-30, 2022.

[O2] **S. Eimer**, Nanotechnology, Nanosensors for Environmental Applications, *1st Annual Meeting on Science Literacy 2021: A prerequisite for stimulating climate change engagement, Beijing (China)*, November 25-27, 2021. [https://journalasc.org/annual\\_meeting/](https://journalasc.org/annual_meeting/)

[O3] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Perpendicular magnetic anisotropy based spintronics hard and flexible devices in Pt/Co stacks with higher thermal stability, *23th Annual International Conference of the China Micro/Nano Technology Society (CSMNT), Harbin (China), online*, September 24-27, 2021.

[O4] **S. Eimer**, Development and characterization of magnetic thin film: Co/Pt, *Seminar at School of Physics of Southeast University, Nanjing (China)*, July 27, 2020. <https://physics.seu.edu.cn/2020/0720/c23226a340415/page.htm>

## Communications par affiche

[A1] **S. Eimer**, H. Cheng, P. Vallobra, B. Zhang, W. Zhao, Perpendicular magnetic anisotropy based spintronics devices in Pt/Co and Pt/Co/X/Pt stacks under different hard and flexible substrates, *Intermag 2023, Sendai (Japan)*, Mai 15-19, 2023.

[A2] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Study of the magnetic properties of /Pt/Co/Ru/Pt and Pt/Co/RuO<sub>2</sub>/Pt modified by irradiation, *7th National conference on magnetics materials and devices, Nanjing (China)*, April 14-16, 2023.

[A3] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Sputtering development for Nano-Spintronic stacks with perpendicular and planar magnetic anisotropy, *ICFM2022 International conference on Frontier Materials, Zhuhai (China), online*, Mai 28-30, 2022.

[A4] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Nano-Spintronic stacks with perpendicular and planar magnetic anisotropy, *6th National Congress of Magnetic Materials and Devices (N-MAD), Hangzhou (China)*, July 15-17, 2022.

[A5] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Basic spintronics devices in Pt/Co stacks with perpendicular magnetic anisotropy, *23th Annual International Conference of the China Micro/Nano Technology Society (CSMNT) Harbin (China)*, September 24-27, 2021.

[A6] **S. Eimer**, H. Cheng, W. Zhao, Nano-Spintronic stacks with perpendicular and planar magnetic anisotropy, *2nd International Forum on emerging functional materials and devices, Yicheng (China)*, September 24-26, 2021.

[A7] **S. Eimer**, B. Zhang, H. Cheng, N. Vernier, Z. Wang, W. Zhao, Technical development for deposition and characterization for Nanospintronic devices, *National meeting on the Higher Education Discipline Innovation Project (Chinese 111 Project), the Ministry of Education and the State Administration of Foreign Experts Affairs, Beijing (China)*, October 11-15, 2016.

## Remerciements

Ce manuscrit ne serait pas complet sans cette partie importante qui est "les remerciements".

Cette partie très personnelle laisse la place à mes élucubrations. La forme et la syntaxe vont sûrement laisser à désirer... mais que les grands écrivains me pardonnent.

Tout d'abord commençons par les remerciements de rigueurs...mais néanmoins sincères.

Je tiens en tout premier lieu remercier les créateurs de cette disposition de validation d'acquis et d'expérience (VAE) qui permet aujourd'hui de pouvoir obtenir un doctorat.

Je remercie également Sorbonne Université et l'ÉD397 (physique et chimie des matériaux) de m'avoir autorisé à effectuer ma VAE en son sein.

Un grand merci à la formation continue et particulièrement à mes deux accompagnateurs Mme **UEBERSFELD France** et **Dr ZHENG Yunling Jacques**. Merci pour votre accompagnement, votre investissement auprès de moi, votre professionnalisme et votre rigueur. Je vais vous faire sûrement intérieurement râler un peu pour la rédaction des remerciements. Mais réellement un grand **MERCIIIIIIIIIII** . (PS : j'attends votre visite en chine )

Viens ensuite les remerciements pour mon jury :

Merci à Pr Nadine d'avoir bien voulu présider ce Jury de Doctorat par la VAE,

Merci à Dr **Jon GORCHON** et Pr **Silviu COLIS** d'avoir assumé la lourde tâche d'être mes rapporteurs.

Merci aux Pr **Michel HEHN**, Dr **Michel VIRET**, mes examinateurs d'avoir libéré aussi du temps et d'être mes examinateurs.

Maintenant passons aux remerciements personnels. (Je vais sûrement oublier beaucoup de personnes ... je ne peux pas écrire 20 pages de remerciements)

Beaucoup de personnes oublient de remercier les premiers acteurs pour l'amour des sciences et de la technologie qu'ils nous ont inculqué. Je veux parler de nos enseignants avant l'université. En passant par la maîtresse du primaire (Mme Martin), les professeurs du collège (Mr Devillard), du lycée (Mme Tisselin, Mme Mathet, Melle Merle, Mr Mervelet ...). Puis ceux que j'ai rencontré dans mon cursus scolaire après le baccalauréat. (Mr Latour et bien d'autres)

Viens enfin le tour de personnes très importantes dans ma vie privée et parfois professionnelle.

En première ligne : Pr **ZHAO Weisheng** ... Weisheng , mon Big Tree , Je ne sais pas où te classer... Boss ? amis ? Famille de cœur ? bref il n'y a pas de mot en français pour décrire la place que tu tiens dans ma vie. Un énorme merci pour ton amitié indéfectible. Un autre merci pour ton soutien et tes encouragements pour cette thèse. Un merci pour tout ce que tu m'as apporté professionnellement, la chance que tu m'as donnée en m'emmenant avec toi dans tes bagages lors de ton retour en chine. Je ne saurais jamais assez te remercier. Merci à toi de m'avoir fait rencontrer Pr FERT Albert, que je remercie ici aussi pour son soutien et ses encouragements.

Tant que je suis dans la partie chinoise je vais y rester un peu :

Merci à tous mes étudiants, amis, collègues et famille de cœur chinoise : Lei Na (ma petite sœur chinoise), Zhang Yue (mon petit frère chinois), Boyu , Annie, Xiaoxian, Xueying, Houyi (mon fils spirituel chinois )...il y en a bien d'autre que je voudrais citer mais pardonner moi... je ne vous oublie pas. Un grand merci a ma Fée chinoise... ton "Úgly Ours " ne t'oublie pas. Merci a ma princesse chinoise (Yan Shuohua) qui a réussi à obtenir son doctorat avant moi. J'espère qu'on trouvera toujours le temps de manger et de se promener ensemble pour papoter. Je t'adore, tu es géniale, ne change pas. Merci à Pierre Vallobra, pour toutes les relectures et corrections, explications etc.

Merci aux personnes de BEIHANG, Pékin, Qingdao, Hefei qui m'ont accompagné ces années.

La chance a voulu que je passe par plusieurs endroits, plusieurs labos avant d'arriver en chine. Je vais, par ordre chronologique remercier les personnes exceptionnelles que j'y ai rencontrés.

A l'IPCMS : Mr Guy Schmerber, Daniel Sport, Jacques Faerber, Fabrice Scheurer etc ainsi bon nombre d'étudiants (Sebastien dit le boss, Elise GC la groopie du boss, Marc, Silviu, Michel...)

Au GREYC : Merci a Mam Mechin , Sir Robbes , BaBa ,Anne-so ma mamoure, ma Splendide Wei pour m'avoir fait découvrir et aimer la Chine et tous les autres membres du laboratoire (étudiants y compris ).

A l'IEF, tout d'abord un énorme merci à Claude Chappert pour m'avoir accepté dans son excellente équipe, lieu où j'ai pu m'épanouir et apprendre une tonne de choses. Merci à L'équipe pour m'avoir tant aidé : Thibaut, Maitre Nicolas (Maitre chocolat), JP, Dafine (merci pour m'avoir laissé jouer avec l'irradiation), JV le musicien, Merci à tous ces étudiants (Jeremy, Manu, Christian, Klaus, Laurence, Capucine, Yuthing ...) et post doctorants qui a travers leurs explications et aides m'ont permis d'évoluer et rendu ce séjour très agréable. Merci à Koro, Claude, Annie, Laurence, Claudie, et toutes les personnes adorables que j'y ai rencontré.

A mon court séjour au C2N (et aussi ex-IEF) : Merci à David le roi du Punch, à mon tonton Macoute, a tous les personnes sympas et adorables que j'ai côtoyées. BON COURAGE a VOUS TOUS.

Merci a tous mes amis pour leurs encouragements : Dominique, Nathalie, Eric (la doudou family), la famille Papayou, lise mon boutchou, Crapouille, Chouchoute et tous les autres.

Voilà j'arrive enfin à la famille. Une énorme pensée pour mon père, cet éléphant rose mangeur de pates de fourmis farcies à la crème de trompe d'ours piquante, papa tu es partis beaucoup trop tôt. J'espère que d'où tu es tu peux lire ces quelques mots et continuer d'être heureux d'avoir faits des enfants supers. Un énorme merci à ma maman pour tout son amour ...et son soutient aussi, même si tu n'as jamais bien compris ce que je fais exactement (moi non plus des fois). Des gros câlins a tous mes frères et sœurs, (PHIPHI, MC, KIKI, ZABOU, DIDi) pour aussi vous remercier de votre soutient et vos encouragements. Une petite tape sur la cibboule de l'intello de la famille, mon filleul Alexandre qui a osé avoir son doctorat avant moi ... (j'attends toujours le super resto). Merci à tout le reste de la famille... Et Surtout Maman, Papa, Brothers and Sister... 我爱你们。

Je finirai ces remerciements par un sublime poème de l'Immortel Jean d'Ormesson :

## Le train de la vie

*« À la naissance, on monte dans le train et on rencontre nos parents.  
Et on croit qu' ils voyageront toujours avec nous.  
Pourtant, à une station, nos parents descendront du train,  
nous laissant seuls continuer le voyage... »*

*Au fur et à mesure que le temps passe,  
d' autres personnes montent dans le train.  
Et elles seront importantes : notre fratrie, nos amis, nos enfants,  
même l' amour de notre vie.*

*Beaucoup démissionneront (même éventuellement l' amour de notre vie),  
et laisseront un vide plus ou moins grand.  
D' autres seront si discrets  
qu' on ne réalisera pas qu' ils ont quitté leurs sièges.*

*Ce voyage en train sera plein de joies, de peines, d' attentes,  
de bonjours, d' au-revoirs et d' adieux.  
Le succès est d' avoir de bonnes relations avec tous les passagers  
pourvu qu' on donne le meilleur de nous-mêmes.*

*On ne sait pas à quelle station nous descendrons,  
donc vivons heureux, aimons et pardonnons.  
Il est important de le faire car lorsque nous descendrons du train,  
nous ne devons laisser que de beaux souvenirs à ceux qui continueront  
leur voyage.*

*Soyons heureux avec ce que nous avons et remercions le ciel de ce voyage  
fantastique.*

*Aussi, merci d' être un des passagers de mon train.  
Et si je dois descendre à la prochaine station,  
je suis content d' avoir fait un bout de chemin avec vous. »*

Jean d' Ormesson

