



HAL
open science

Le ferromagnétisme en couches minces pour les hyperfréquences

Bernard Viala

► **To cite this version:**

Bernard Viala. Le ferromagnétisme en couches minces pour les hyperfréquences. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Université de Grenoble, 2008. tel-00662120

HAL Id: tel-00662120

<https://theses.hal.science/tel-00662120>

Submitted on 23 Jan 2012

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.

Habilitation à Diriger les Recherches

Discipline : Physique

Soutenu par

Bernard Viala

Le 18 Décembre 2008 à Grenoble

**Le ferromagnétisme en couches minces pour
les hyperfréquences**

Jury

Jean François Bobo, Chargé de Recherche, CEMES/ONERA Toulouse, *Rapporteur*

Dominique Cros, Professeur, Université de Limoges, *Rapporteur*

Patrick Quéffelec, Professeur, Université de Brest, *Rapporteur*

Olivier Geoffroy, Maître de Conférences, Université de Grenoble, *Examineur*

Nicolas Vukadinovic, Ingénieur HDR, Dassault Aviation Saint Cloud, *Examineur*

MINATEC CEA-LETI

Département d'Intégration Hétérogène sur Silicium
Direction de la Recherche Technologique

SPINTEC URA 2512 CEA/CNRS
Institut NAnosciences et Cryogénie

PREAMBULE	3
INTRODUCTION	5
CHAPITRE 1 : « FONDAMENTAUX »	7
1. INTRODUCTION	9
2. « FONDAMENTAUX » N°1 : LE CHAMP COERCITIF	9
2.1 <i>Rappels</i>	9
2.2 <i>Discussion</i>	11
2.3 « <i>Fondamentaux</i> » N°1	12
3. « FONDAMENTAUX » N°2 : L'ÉPAISSEUR CRITIQUE	14
3.1 <i>Rappels</i>	14
3.2 <i>Les contraintes</i>	16
3.3 <i>La morphologie des grains</i>	20
3.4 « <i>Fondamentaux</i> » N°2	21
4. « FONDAMENTAUX » N°3 : PERMEABILITE DYNAMIQUE	22
4.1 <i>Rappels</i>	23
4.2 <i>Structure en domaines</i>	26
4.3 <i>Résonance de domaines</i>	27
4.4 <i>Fondamentaux n°3 : perméabilité dynamique des microstructures</i>	30
5. CONCLUSION	31
CHAPITRE 2 : LE PERMALLOY	33
1. INTRODUCTION	35
2. DOUX PAR NATURE	35
3. ÉPAISSEUR CRITIQUE	36
4. DYNAMIQUE ET INTEGRATION	39
5. PRINCIPE DE L'EDGE CURLING WALL (ECW)	41
6. REALISATIONS TECHNOLOGIQUES	46
7. ALTERNATIVE AU PERMALLOY	49
8. CONCLUSION	52
CHAPITRE 3 : LES FILMS NANOCRISTALLINS DE FE-N	55
1. INTRODUCTION	57
2. VERS LA NANO-INGENIERIE DES FILMS	57
2.1 <i>Loi de Sieverts</i>	57
2.2 <i>Contrôle de l'anisotropie magnétocristalline</i>	60
2.3 <i>Contrôle de la taille des cristallites</i>	63
3. AJUSTEMENT DES PROPRIETES PHYSIQUES	64
4. ÉPAISSEUR CRITIQUE	67
5. DYNAMIQUE ET INTEGRATION	68
6. REALISATIONS TECHNOLOGIQUES	71
7. ALTERNATIVE AUX FE-N	74
7.1 <i>Variantes avec FeCo-N</i>	74
7.2 <i>Variantes « granulaires » avec Fe-N-O</i>	76
8. CONCLUSION	80
CHAPITRE 4 : VERS L'UTILISATION DU COUPLAGE D'ECHANGE	83
1. INTRODUCTION	85
2. MOTIVATIONS	85
3. AJUSTEMENT DES PROPRIETES PHYSIQUES	89
3.1 <i>Maximiser le couplage aux interfaces</i>	89
3.2 <i>Régler les propriétés via e_F</i>	90
3.3 <i>Origine de H_k</i>	91
4. DYNAMIQUE ET INTEGRATION	92
4.1 <i>Limites de l'exploitation dynamique</i>	92
4.2 <i>Anisotropies unidirectionnelles statique et dynamique</i>	94
4.3 <i>Dépendances avec la température</i>	95

4.4 L'effet de dilution	99
4.5 Un premier bilan	100
5. REALISATIONS TECHNOLOGIQUES	101
5.1 Inductances RF toroïdales.....	101
5.2 Guides d'ondes coplanaires à brin « enrobé »	102
6. CONCLUSION.....	103
CONCLUSION GENERALE.....	107
PERSPECTIVES.....	109
ANALYSE D'UN CONTEXTE.....	109
VERS DES HETEROSTRUCTURES « MULTIFERROÏQUES »	109
LE VERROU SUR LES « TEMPERATURES ».....	110
1.1 Compression de la longueur d'onde guidée.....	111
1.2 Agilité hyperfréquence.....	111
1.3 Alternative aux metamateriaux.....	112
1.4 Commande de l'aimantation par la tension.....	113

Préambule

L'Habilitation à Diriger des Recherches démarre par la rédaction d'un manuscrit qui est en premier lieu l'occasion de faire le point et de présenter son activité scientifique. Dans mon cas, elle ne constitue qu'une part de mon parcours professionnel, mais une part essentielle, consacrée à la recherche appliquée en magnétisme. C'est à l'interface du monde académique et du secteur industriel, quelqu'en soit le sens emprunté, que se cristallise mon intérêt. J'y puise ma motivation depuis plus d'une dizaine d'années maintenant. La contre partie est un parcours plutôt non linéaire et constitué d'expériences multiples et pas toujours continues. Cette diversité correspond aux différents projets et missions dont j'ai eu la charge ou auxquels j'ai contribué dans des domaines d'application variés : conversion d'énergie, enregistrement magnétique, capteurs, composants passifs, spintronique J'ai cependant choisi d'éviter une description de mes activités basée sur une simple juxtaposition de réalisations qui aurait pu paraître hétéroclite au lecteur. A l'inverse, j'ai souhaité rendre visible un fil conducteur qui a toujours existé malgré ces ruptures d'activités. C'est donc avec un certain recul que je parlerai ici des problématiques de l'élaboration et de l'intégration des couches minces magnétiques dans les microsystèmes. Je propose d'en restituer le volet le plus scientifique sur le thème choisi *des couches minces ferromagnétiques douces pour les hyperfréquences*. Pour le physicien, cela reste un terrain multidisciplinaire partiellement défriché où l'enjeu est grand puisqu'il s'agit de faire côtoyer le ferromagnétisme et les microondes ; pour le technologue, c'est une opportunité forte au regard des tendances actuelles de la microélectronique qui sort de la route tracée par la « loi de Moore » car le potentiel d'innovation y est très élevé.

Pour essayer de répondre à l'esprit de l'Habilitation, j'ai donc rassemblé des *faits marquants*, en revenant au préalable sur ce que j'appellerai des *fondamentaux*. Je souhaiterais amener le lecteur au-delà des difficultés inhérentes à l'élaboration proprement dite de ces couches minces et montrer que l'intégration technologique à l'échelle des microsystèmes confronte à des difficultés récurrentes, qui ne sont pas toujours abordées dans la littérature. Je dresserai donc en premier lieu un tableau de ces *fondamentaux* autour duquel s'organiseront les discussions à venir. Les routes poursuivies s'écarteront parfois de l'état de l'art du moment et je mettrai en avant l'originalité de certains travaux. Ce choix de rédaction offrira un document synthétique du point de vue scientifique et ponctué d'illustrations provenant des réalisations technologiques qui relèvent de la partie applicative de mon travail.

Mais les résultats sont bien sûr le fruit d'un travail en équipe. Je ne conçois pas la recherche autrement, en particulier dans la recherche technologique où le succès tient à la grande diversité de ses acteurs. C'est pourquoi à la difficulté de la synthèse s'ajoute celle de l'honnêteté au sens de ne restituer que ma véritable contribution. Dès lors, je choisis de centrer ce manuscrit sur les propriétés physiques des matériaux, en laissant les problématiques conceptuelles, technologiques et instrumentales aux personnes beaucoup plus compétentes que moi. Ce choix permet de donner une unité à ce manuscrit et de dévoiler une stratégie de développement qui m'est propre. Dans la recherche fondamentale, ces ruptures donneraient lieux à des articles dans des journaux scientifiques car la publication y est un acte essentiel. Dans la recherche appliquée, ces ruptures m'ont conduit plus naturellement vers des dépôts de brevets. Dans tous les cas, il s'agit d'abord de produire de la connaissance et de la transmettre.

Je terminerai ce préambule par une courte réflexion sur l'Habilitation. Elle donne la possibilité de diriger des thèses et la conception que j'ai des thèses est celle d'un acte majeur pour la vie scientifique et celle des laboratoires. Mais l'accompagnement humain du doctorant est également fondamental. C'est l'accomplissement d'une mission de formation qui fait partie intégrante de notre métier et à laquelle je suis attachée.

Introduction

Dans ce manuscrit, je ne parlerai pas de mes travaux de thèse bien qu'il s'agisse de l'étape décisive par où tout a commencé. Je ne reviendrai que très ponctuellement sur la période de mon post-doctorat au MINT de l'Université d'Alabama (1994-96). J'y ai fait mon apprentissage des couches minces magnétiques dans la période florissante du « Data Storage ». Ce fût une expérience clé dont germera nombre d'idées quelques années plus tard et qui jalonnent encore aujourd'hui ce manuscrit. Ces pages rassemblent donc une grande part de mon activité concentrée sur ces sept dernières années au CEA-LETI (2001-08). Ainsi, les éléments rassemblés permettent d'aborder les propriétés magnétiques des couches minces ferromagnétiques douces, du domaine quasi-statique à celui des hyperfréquences. J'y discuterai plus particulièrement des conséquences de la structuration à l'échelle spécifique des microsystemes où les hautes fréquences peuvent entraîner des particularités dans le comportement dynamique des couches ferromagnétiques. L'interaction des ondes avec la matière sera notre seconde préoccupation car nous restons ici dans le domaine des couches minces (voire très minces). Ce choix élimine d'autres travaux qui ne figureront donc pas dans ce manuscrit, mais la cohérence de ce dernier n'en sera que renforcée.

Le premier est consacré à ce que j'appelle des *fondamentaux* : synthèse des points clé du développement des couches minces ferromagnétiques douces pour les hyperfréquences. Ils sont la conséquence de la présence des parois magnétiques, mais qui s'avère beaucoup plus contraignante envers le caractère doux (ou perméable) dans les couches minces. Je passerai tour à tour les problématiques du faible champ coercitif, qui est un préalable en soit, de l'épaisseur critique et de la structuration à l'échelle des microsystemes. Cette échelle est particulière parce qu'elle est intermédiaire à celles des composants discrets et des nanostructures et peut solliciter des phénomènes originaux, comme la résonance de parois dont nous verrons au chapitre 2 les conséquences préjudiciables sur de certains dispositifs.

Le deuxième chapitre est consacré, dans une première partie, aux couches minces polycristallines de Permalloy ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$) : matériau doux par excellence et longtemps état de l'art du domaine. C'est est à peu près le seul exemple probant d'une transition réussie des matériaux massifs vers les couches minces. Ce chapitre sera surtout l'occasion d'illustrer les phénomènes physiques qui ont conduit aux *fondamentaux* et de proposer des solutions originales comme le principe de l'« Edge Curling Wall » qui conduit à la suppression des structures en domaines. Toute fois, nous quitterons assez vite ce matériau, qui n'occupe que la partie basse de la bande spectrale d'intérêt, pour aborder les couches minces amorphes de CoZr : premières véritables couches ferromagnétiques douces pour les hyperfréquences. L'émergence de ces films illustre un premier tournant dans l'état de l'art, mais la métastabilité intrinsèque dont ils souffrent conduira à se tourner vers les couches minces nanocristallines.

Le troisième chapitre leur est consacré avec l'exemple des films Fe-N. Ils sont un second tournant dans l'état de l'art, en revenant à mi chemin des couches polycristallines et amorphes tout en restant toujours dans l'idée historique de l'alliage unique. J'exposerai les bases physiques de l'incorporation de l'azote en solution solide dans le fer, qui est la clé à l'établissement de la microstructure nanocristalline douce dans ces films. Je m'arrêterai ensuite en détails sur la compréhension de la relation intime entre la microstructure et les propriétés magnétiques, avant d'aborder une variante originale qui combinera azote et oxygène. Il s'agit des films granulaires de Fe-NO. Enfin, je proposerai au lecteur de toucher à la finalité de notre travail avec un exemple d'intégration technologique complet pour des inductances radiofréquences sur silicium. Cette expérience sera riche mais conduira aussi au constat que la tendance à la complexité grandissante de ces matériaux constitue à terme un

véritable handicap. C'est ici que nous quitterons l'état de l'art établi et la démarche historique pour des couches ferromagnétiques douces fondées sur la seule notion d'alliage unique.

Le quatrième chapitre est l'illustration de cette rupture. Il préfigure une ouverture plus générale aux hétérostructures magnétiques. L'idée est de s'affranchir totalement du préalable au faible champ coercitif des films d'alliage unique qui cantonne aux démarches précédentes. Je reprendrai l'image de la polarisation externe par un champ magnétique pour proposer une solution originale fondée sur le couplage d'échange avec une couche antiferromagnétique. Cette idée conduira à un état équivalent de saturation mais ici à champ nul, ce qui est fondamental pour les applications visées. Tout est contenu dans cette idée qui, de plus, conduit à l'élimination des *fondamentaux* du chapitre 1. Dès lors, des résultats supérieurs à l'état de l'art établi vont émergés rapidement comme en témoigneront des résonances ferromagnétiques très « piquées » jusqu'à 10 GHz avec des niveaux de perméabilité quasi-ultimes. Je conclurai ce chapitre par d'autres exemples d'intégration avec des topologies inédites ici. On touchera alors aux limites physiques de la miniaturisation en hyperfréquences par le magnétisme seul. J'irai plus loin à la fin du manuscrit en poussant l'idée d'une fonctionnalisation plus grande avec des hétérostructures multiferroïques.

Le manuscrit sera conclu par quelques phrases. Suivra l'exercice imposé par l'Habilitation et consacré aux perspectives qui permettront de revisiter certains aspects de la magnétoélectricité historique, mais sous un nouvel angle ici, et de rejoindre aussi les disciplines connexes des métamatériaux et de la spintronique.

Chapitre 1 : « Fondamentaux »

1. Introduction
2. « Fondamentaux » n°1 : champ coercitif
3. « Fondamentaux » n°2 : épaisseur critique
4. « Fondamentaux » n°3 : perméabilité dynamique
5. Conclusion

1. Introduction

Une image pour commencer. Bozorth recensera plusieurs dizaines de matériaux ferromagnétiques doux massifs à usage industriel en électrotechnique [1]. Parallèlement, Bunshah et Thornton listeront très tôt le nombre remarquable d'applications rapidement rejointes par les couches minces dont bien sûr la microélectronique [2]. Paradoxalement, on ne compte pour ainsi dire qu'une seule couche mince ferromagnétique douce dans l'état de l'art industriel : c'est le Permalloy. Pourtant, les principes métallurgiques des alliages de base restent valables. Les techniques d'élaboration ont grandement gagné en performance et versatilité. Les couches minces ferromagnétiques douces ne sont donc pas une simple mise en forme des alliages historiques dont une dimension serait simplement réduite à travers l'épaisseur. Alors, pourquoi ? Je reviens ici sur quelques points théoriques clé. Le recul sur la littérature m'incite à les appeler des *fondamentaux* à cause de leur caractère récurrent. Je concentrerai cette réflexion sur trois préoccupations : l'élaboration, l'intégration et les hyperfréquences. Le retour à ces *fondamentaux* permettra une lecture synthétique des principales tendances et ruptures dans l'état de l'art, sans rentrer dans stricte une revue chronologique.

2. « Fondamentaux » n°1 : le champ coercitif

Revenons sur la notion de champ coercitif H_c . Le champ coercitif traduit la facilité avec laquelle les domaines magnétiques vont pouvoir se former et les parois magnétiques se déplacer pour assurer le renversement de l'aimantation. Comprendre sa relation à la microstructure est fondamental.

On dénombre habituellement trois contributions à H_c :

- H_N : le champ de nucléation des domaines de renversement (N pour nucleation)
- H_G : le champ de croissance des ces domaines (G pour growth)
- H_W : le champ de déplacement des parois magnétiques (W pour wall)

Seul H_W trouve une formulation analytique accessible, notamment, au regard de la taille des cristallites D . L'image est donc très incomplète au sens quantitatif. Mais, elle fixe les tendances importantes.

2.1 Rappels

Considérons un cristal parfait et exempt de toute contrainte. Le blocage ou le ralentissement des parois est intimement lié à la constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 (on négligera K_2) qui siège dans le cristal. K_1 fixe la longueur d'échange ferromagnétique L_0 et donc la largeur des parois magnétiques (de Bloch) δ_B .

$$L_0 = \left(\frac{A}{K_1} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 1}$$

$$\delta_B = \pi \times L_0 \quad \text{Eq. 2}$$

A est la constante d'échange

La clé du magnétisme doux dans les polycristaux se joue ici dans le rapport entre largeur des parois δ_B et taille des cristallites D .

Si $\delta_B \ll D$, les parois sont beaucoup plus fines que la microstructure. Elles s'alignent donc spontanément à l'intérieur de chaque grain selon la direction imposée par K_1 . Dès lors, on comprend aisément qu'elles pourront se déplacer très rapidement à l'intérieur des grains mais qu'elles « buteront » principalement sur les joints de grains. L'analogie est celle d'une cinématique d'engrègement / désengrègement sur défauts localisés. Kersten [3] établira la relation classique :

$$H_w = p_c \frac{\sqrt{A \times K_1}}{M_s \times D} \quad \text{Eq. 3}$$

p_c est un préfacteur sans dimension proche de l'unité et $4\pi Ms$ est l'aimantation volumique (emu/cc)

A l'opposé, si $\delta_B \gg D$, on est dans l'image moins classique de parois nettement plus larges que les cristallites. L'aimantation n'est plus autorisée à se réaligner localement selon l'axe facile de chaque cristallite à travers K_1 . La théorie des fluctuations d'aimantation prévoit qu'elle se réaligne dans un volume beaucoup plus grand V_{ex} où siège une anisotropie effective moyenne $\langle K \rangle$. La mobilité des parois dépendra donc ici de cette constante $\langle K \rangle$.

$$H_w = p_c \frac{\langle K \rangle}{M_s} \quad \text{Eq. 4}$$

L'enjeu porte sur le calcul de $\langle K \rangle$.

Herzer établit le « Random Anisotropy Model » [4]. Il s'applique aux matériaux doux isotropes, c'est-à-dire dépourvu d'anisotropie uniaxiale (K_u). Il considère un polycristal parfait constitué d'un assemblage spatialement désordonné de volumes unitaires V_{ex} eux même constitués d'un nombre fini de cristallites parfaitement couplées. Son modèle se résume aux expressions suivantes.

$$V_{ex} \propto L_{ex}^3 \quad \text{Eq. 5}$$

$$L_{ex} = \left(\frac{A}{\langle K \rangle} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 6}$$

et

$$\langle K \rangle = \frac{K_1^4}{A^3} \times D^6 \quad \text{Eq. 7}$$

Avec l'équation 4, on arrive à l'expression recherché.

$$H_w = p_c \frac{K_1^4}{M_s \times A^3} \times D^6 \quad \text{Eq. 8}$$

Hoffmann [5] reprendra les calculs d'Herzer mais en s'appuyant cette fois sur la très complète « Ripple Theory » dont il est l'un des pères fondateurs. Ces travaux s'appliquent spécifiquement aux couches minces et prennent en compte l'anisotropie uniaxiale K_u . On rappelle que K_u est lié au champ d'anisotropie induit H_k par

$$H_k = \frac{2K_u}{M_s}$$

Ici, c'est K_u qui définit grossièrement la largeur des parois δ_B .

$$\delta_B \approx \pi \left(\frac{A}{K_u} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 9}$$

Il traite au premier ordre la mobilité des parois à 180° dans un contexte hautement inhomogène, c'est à dire perturbé localement par des fluctuations spatiales de l'aimantation (dans et hors plan de la couche mince).

De façon générale, il établit l'expression de $\langle K \rangle$.

$$\langle K \rangle = \frac{2}{\sqrt{4\pi}} \frac{K_1 D}{\sqrt{n}} \frac{M_s^{1/8}}{d^{1/4} A^{3/8}} \left(\frac{2K_u}{M_s} \right)^{5/8} \quad \text{Eq. 11}$$

avec : $n = d/D$ pour les films d'épaisseur d et dont le diamètre des cristallites D est inférieur à d
 $n = 1$ pour les films colonnaires.

qui réarrangée sous la forme de grandeurs expérimentalement mesurables conduit à l'expression de H_w .

$$H_w = \frac{\beta}{L_{180^\circ}} \frac{\sqrt{2}}{\pi} \frac{1}{\sqrt[4]{A}} \frac{S \sqrt{D} \sqrt[4]{K_u}}{M_s} \quad \text{Eq. 12}$$

β est un préfacteur proche de l'unité et L_{180° est la longueur de couplage parallèle à la paroi.

Ici, Hoffmann introduit un terme particulier S pour décrire la relation à la microstructure.

$$S = \frac{K_1 \times D}{\sqrt{n}} \quad \text{Eq. 13}$$

S est précisément ce qu'il appellera le facteur de structure (ou « ripple parameter »). C'est une grandeur mesurable à part (voir chapitre 2) qui représente en quelque sorte le facteur de mérite de la microstructure au regard de la mobilité des parois à 180°.

2.2 Discussion

Les équations 3, 8 et 10 ne donnent donc pas la même description de H_c au regard de la taille des cristallites D . Les tendances sont résumées dans le tableau 1 et illustrées sur la figure 1. On dégage les trois lignes directrices qui jalonnent l'état de l'art.

Matériaux massifs		Couches minces	
$\delta_B \ll D$	$\delta_B \ll D$	$\delta_B \sim D$	
		$D < d$	$D = d$
$H_c \propto \frac{1}{D}$	$H_c \propto D^6$	$H_c \propto \frac{D^2}{\sqrt{d}}$	$H_c \propto D^{\frac{3}{2}}$

Tab.1 : résumé des tendances théoriques entre le champ coercitif H_c et la taille des cristallites D pour les matériaux massifs et les couches minces d'épaisseur d

- la première tendance est des plus classiques avec une dépendance en D^{-1} . Elle figera longtemps l'image associant caractère doux avec gros grains ($D > 10 \mu\text{m}$). On est dans la

logique des matériaux décrits par Bozorth. On comprend dès lors pourquoi la très grande majorité n'est pas transférable en couche mince où la taille des grains est en général inférieure au micron.

- la seconde tendance l'est beaucoup moins avec une dépendance en D^{-6} . C'est un tournant important puisqu'elle suggère d'aller dans la direction opposée à celle de l'état de l'art. Elle conduira à l'idée d'une possible anisotropie magnétocristalline évanescente (« vanishing anisotropy ») si la taille des cristallites est suffisamment réduite ($D < 50$ nm). L'image change donc radicalement en associant caractère doux avec disparition du caractère cristallin.

- la troisième tendance va dans le même sens mais avec une dépendance en D^{-2} (ou $3/2$). Elle respecte donc le concept précédent mais de manière moins favorable comme illustrée (en rouge) sur la figure 1. En clair, la réduction de la taille des grains sera moins efficace au regard de la réduction de H_c en présence d'une anisotropie uniaxiale (K_u). Cette dernière tendance entérine l'image où caractère doux et absence de structure cristalline sont désormais associés ($D < 10$ nm).

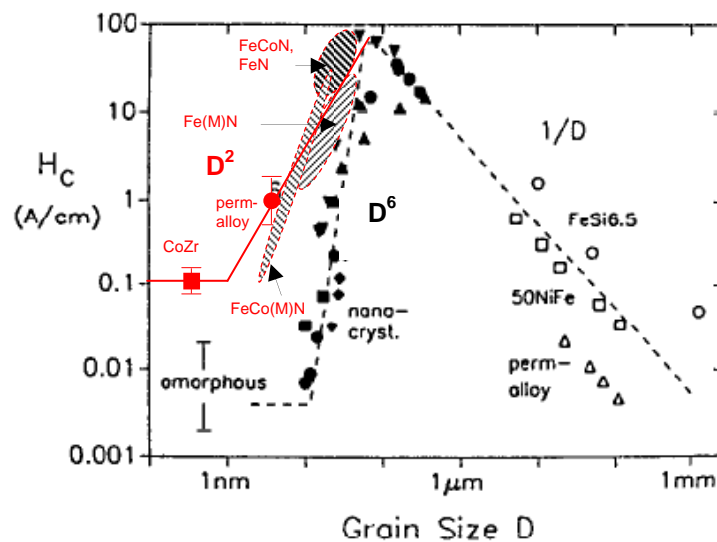


Fig.1 : illustration des tendances expérimentales entre le champ coercitif H_c et la taille des cristallites D pour les matériaux massifs isotropes (en noir) d'après [5] et pour les couches minces à anisotropie uniaxiale (en rouge) d'après nos travaux.

2.3 « Fondamentaux » $N^\circ 1$

Le concept de l'anisotropie évanescente est l'idée fondatrice du premier des *fondamentaux*. Cependant, il faut l'étendre aux couches minces et à nos préoccupations, c'est-à-dire les fortes aimantations. L'idée d'Herzer est la condition nécessaire et suffisante pour les matériaux ferromagnétiques doux isotropes, c'est-à-dire sans structure en domaines préférentielle. Nous venons de voir qu'elle ne s'applique pas immédiatement aux couches minces. Or, l'intérêt pour les couches minces que je développerai plus tard réside précisément dans l'établissement d'une structure en domaines organisée grâce à la possibilité d'une anisotropie uniaxiale. Mais ceci limite aussi la portée du « random anisotropy model » comme illustré sur la figure 2. De plus, on constate que la difficulté augmente considérablement avec la course aux fortes aimantations où l'on doit faire face à des constantes d'anisotropie magnétocristalline plus grandes de un à deux ordres de grandeurs (voir tableau 2). Donc, hormis une véritable structure amorphe, les conditions à l'anisotropie magnétocristalline évanescente seront difficilement satisfaites sans autres contributions à la minimisation de K_1 . C'est ce que nous verrons dans les prochains chapitres.

	Ni	Co	Fe
$4\pi M_s$ (T)	0.6	1.7	2.2
K_1 (erg/cc)	$5.5 \cdot 10^4$	$4.3 \cdot 10^6$	$4.8 \cdot 10^5$

Tab.2 : valeurs de l'aimantation à saturation $4\pi M_s$ et de la constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 (en valeur absolue) pour le nickel, le cobalt et le fer.

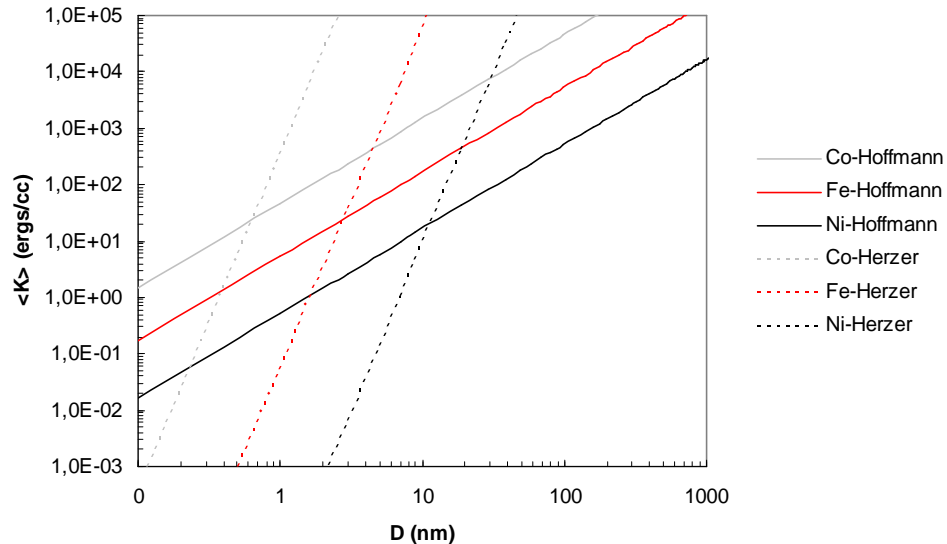


Fig.2 : illustration du principe d'anisotropie évanescence d'après Herzer et Hoffmann appliqué au Ni, Fe et Co (représentatif des alliages riches en ces éléments respectifs). Note : pour les calculs, on utilise les données du tableau 2 et on prend $H_k=5$ Oe et $d=0.1\mu m$

Le lecteur trouve ici les raisons au très petit nombre d'alliages historiques ferromagnétiques doux qui ont trouvé un pendant en couches minces. Ce sont principalement ceux dont la composition chimique répond intrinsèquement à une valeur de K_1 faible, ce qui conduit naturellement au Permalloy ($Ni_{80}Fe_{20}$) et à quelques variantes avec addition de Co ($NiFeCo$). Ce sera l'objet de la première partie du chapitre 2. Suivront les films amorphes de $CoZr(Ta, Nb)$ qui seront le premier aboutissement concret du concept de l'anisotropie évanescence ($D < 1$ nm). Ils ne présenteront cependant qu'une aimantation « diluée ». Ce sera l'objet de la seconde partie du chapitre 2. Mais on ne répond ici qu'à une petite partie du problème car on a seulement accès à des aimantations modérées (0.5 à 1 T). Des valeurs plus élevées vont de pair avec une anisotropie magnétocristalline plus forte comme on l'a dit. Une ingénierie plus subtile de la microstructure s'avère donc nécessaire. C'est ce que je commenterai en détails dans le chapitre 3.

Ce que j'appelle donc le premier des fondamentaux est le préalable aux couches ferromagnétiques que nous utiliserons par la suite en hyperfréquences. Il se résume à rassembler d'abord les conditions à l'anisotropie évanescence. La conservation d'une aimantation élevée ($4\pi M_s > 1$ T) avec l'établissement du caractère doux ($H_c < 1$ Oe) en dépend. D'un point de vue pratique, cela se traduit par affiner la taille des grains en deçà de 10 nm et réduire la constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 d'au moins un ordre de grandeur par une voie annexe.

3. « Fondamentaux » n°2 : l'épaisseur critique

Etablir les conditions à l'établissement du caractère doux dans les couches minces ferromagnétiques est une chose, le maintenir à des épaisseurs compatibles avec les applications en est une autre. Je reviens ici sur les causes physiques à cette limitation que l'on appelle l'épaisseur critique.

3.1 Rappels

On est souvent dans l'idée reçue que l'aimantation dans les couches minces ferromagnétiques uniaxiales est parfaitement confinée dans le plan. C'est justifié si l'on se contente de regarder l'énergie magnétostatique macroscopique qu'il faudrait vaincre pour que l'aimantation se maintienne perpendiculairement à la couche de manière uniforme. Cette dernière est donnée classiquement par

$$E_{macro}^{\perp} = 2\pi M_s^2 \quad \text{Eq. 14}$$

Sa valeur ($\sim 10^7$ erg/cc) dépasse d'au moins quatre ordres de grandeur les autres valeurs mises en jeu dans le plan (K_u , $\sim 10^3$ erg/cc ...). Les couches minces ferromagnétiques douces ne seraient donc qu'un problème à deux dimensions.

Mais Hoffmann nous a rappelé qu'il existe en réalité des fluctuations spatiales locales de l'aimantation y compris hors du plan des couches. L'amplitude de ces dernières restent modérées (± 1 à 2°) au regard de la « Ripple Theory » qui ne prend pas en compte de contributions spécifiques à une possible anisotropie perpendiculaire. Or, les contraintes et des morphologies singulières pour les grains sont très présentes dans les couches minces et peuvent jouer un rôle déterminant. On va voir qu'il existe des contributions énergétiques non négligeables qui peuvent se soustraire à $2\pi M_s^2$ et autoriser une déviation hors du plan de seulement quelques degrés supplémentaires. Il peut apparaître alors une autre configuration énergétiquement stable pour la structure en domaine : ce sont les « stripe domains » ou domaines en bande parallèle. Le critère sur les faibles champs coercitifs ($H_c \leq 1$ Oe) précédemment établi peut s'en trouver interrompu brutalement.

L'épaisseur critique d_c marque donc cette transition abrupte entre « ripples » au caractère doux et « stripe domains » au caractère non doux. Si les premières sont pénalisantes envers les faibles valeurs de H_c comme on l'a vu, les derniers sont prohibitifs car il s'agit d'une configuration d'aimantation irréversible au sens des faibles champs ($H_c \gg 10$ Oe) où siègent des piégeages magnétostatiques de surface. Du point de vue théorique cette transition est mal couverte mais le cas des « stripe domains » a été traité par Saito et Fujiwara [6].

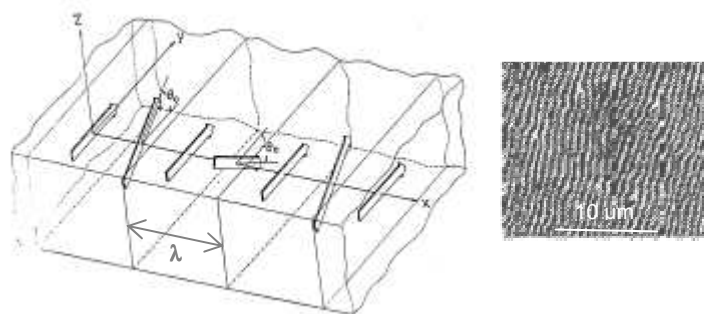


Fig.3 : modèle de la structure en domaine de type « stripe domains » d'après Saito et Fujiwara [6] et image MFM obtenue sur un film de FeTaN d'épaisseur $1.5 \mu\text{m}$ (d'après nos travaux)

Les calculs s'appliquent à un film d'épaisseur d où la distribution de l'aimantation est parfaitement uniforme avec une alternance de $\pm \theta_0$ par rapport à la position horizontale (voir figure 3). La déviation angulaire θ_0 a pour origine l'existence d'une possible constante d'anisotropie perpendiculaire « supplémentaire » que nous appellerons K_{sup}^\perp .

Saito et Fujiwara établiront les conditions d'équilibre pour une telle configuration de l'aimantation en rapport avec l'épaisseur de la couche mince d . Il aboutit d'abord à l'expression de la largeur d'un domaine en bande λ_{SD} (ou la $\frac{1}{2}$ période de la structure) en fonction de θ_0 .

$$\lambda_{\text{SD}} = 2 \left(\frac{A \times d}{M_s^2} \right)^{\frac{1}{3}} \left\{ \frac{\theta_0}{\cos \theta_0 \left[\frac{1}{\left(\frac{\pi}{2} - \theta_0 \right)} - \frac{1}{\left(\frac{\pi}{2} + \theta_0 \right)} \right]} \right\}^{\frac{2}{3}} \quad \text{Eq. 15}$$

On constate dans ces conditions que la largeur d'un domaine en bande croit de manière monotone avec θ_0 . La minimisation de l'énergie pour un tel système amène à une condition sur l'épaisseur : c'est la définition exacte de l'épaisseur critique d_c .

$$d_c = 27 \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^2 \left(\frac{A \times M_s^4}{K_{\text{sup}}^\perp{}^3} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 16}$$

L'expression peut ensuite se simplifier en considérant que $\frac{M_s^4}{K_{\text{sup}}^\perp{}^2} \approx 1$ pour aboutir à

$$d_c \approx 27 \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^2 \left(\frac{A}{K_{\text{sup}}^\perp} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 17}$$

J'attire ici l'attention du lecteur sur la grande similitude de cette expression avec celle de la largeur d'une paroi de Bloch que nous avons vue en tout début de ce chapitre (Eq. 2), ce qui conduit à une définition plus pragmatique de d_c . Il suffit de considérer que les domaines en bandes ont grossièrement une section carrée ce qui nous ramène à l'image plus classique d'un film qui posséderait des pseudo parois de Bloch dans l'épaisseur et dont la largeur serait précisément $\delta_B \sim \lambda_{\text{SD}}$. Il suffit alors de remplacer K_1 par K_{sup}^\perp dans l'équation 2. L'épaisseur critique devient alors celle d'une telle paroi de Bloch.

$$\delta_B \approx \pi \left(\frac{A}{K_1} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{Eq. 2}) \quad \Leftrightarrow \quad \delta_B^\perp \approx \pi \left(\frac{A}{K_{\text{sup}}^\perp} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 18} \quad \text{et} \quad d_c = \delta_B^\perp$$

D'où la définition simplifiée de d_c

$$d_c \approx \pi \left(\frac{A}{K_{\text{sup}}^\perp} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 19}$$

L'analogie avec nos premières discussions apparaît alors immédiatement. Nous avons vu que la clé du caractère doux au regard de K_1 se jouait dans le rapport $\delta_B \ll D$, où D est la taille des cristallites D . Elle se joue ici au regard de K_{sup}^\perp dans le rapport $\delta_B^\perp \ll d$, où d est l'épaisseur du film. L'épaisseur critique prend alors un sens explicite en considérant qu'il s'agit de l'épaisseur minimale pour laquelle peut se former cette pseudo paroi de Bloch qui conditionne la stabilité de la structure en « stripe domains ».

Il est difficile d'aller au-delà du point de vue théorique et de prévoir l'évolution de la mobilité des parois ou celle du champ coercitif H_c . Seule la forme très singulière des cycles d'hystérésis (dans le plan des couches) peut être anticipée comme illustrée sur la figure 4. L'expérience montre que les valeurs représentatives de H_c sont un ordre de grandeur au dessus de celles que l'on attend (> 10 Oe).

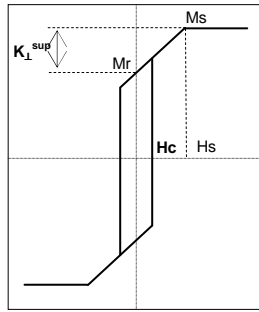


Fig.4 : cycle d'hystérésis théorique représentatif de la structure en « stripe domains »

La condition à la conservation du caractère doux se résume donc ici à rester en dessous de l'épaisseur critique ($d < d_c$). L'enjeu est sur l'extension de cette limite, ce qui va constituer le deuxième des *fondamentaux*. Nous devons maintenant considérer les possibles contributions à K_{sup}^\perp et évaluer les valeurs représentatives de d_c .

3.2. Les contraintes

Si l'on considère maintenant que le cristal peut être soumis à une contrainte isotrope σ , nous devons introduire les constantes de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} au côté de K_1 . Je précise que la suite n'est valable que pour la symétrie cubique, ce qui exclut le cobalt des discussions sur les contraintes. Afin d'estimer K_{sup}^\perp , il faut au préalable calculer l'énergie moyenne totale $\langle E_{\text{total}} \rangle$ contenue dans le polycristal (supposé infini). Il n'est pas utile d'en développer les détails ici. Le calcul démarre en sommant les énergies au sein d'une maille élémentaire en tenant compte des orientations cristallographiques dans un premier repère interne. Il se poursuit pour le polycristal en effectuant une moyenne spatiale selon l'orientation préférentielle (textures) de l'ensemble des cristallites dans un second repère associé cette fois à la couche mince (figure 5). Dans un souci de démonstration générale, on considèrera toutes les textures possibles, soit (100), (110), (111) et le cas particulier (rdm) d'absence de texture (rdm pour « random ») indépendamment de la vraie nature du film (cfc, bcc ...).

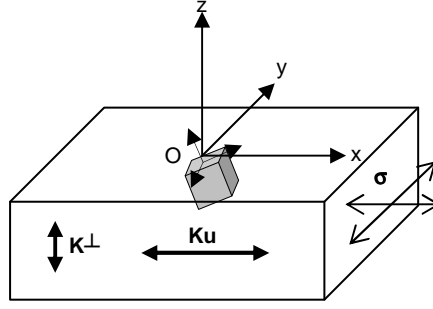


Fig.5 : définition des repères associés au cristal unitaire et au film avec K_u la constante d'anisotropie uniaxiale ($// Ox$), K_{sup}^\perp la constante d'anisotropie perpendiculaire ($// Oz$) et σ la contrainte isotrope dans le plan (Oxy)

On obtient les relations générales suivantes :

$$\text{sans texture (rdm)} : \langle E_{total} \rangle_{rdm} = K_U \alpha_1^2 + \left(\frac{3}{5} \lambda_{100} + \frac{9}{10} \lambda_{111} \right) \sigma \alpha_3^2 \quad \text{Eq. 20}$$

$$\text{avec texture (100)} : \langle E_{total} \rangle_{100} = K_U \alpha_1^2 + K_1 \left(\frac{3}{4} \alpha_3^2 - \frac{7}{8} \alpha_3^4 \right) + \frac{3}{2} \lambda_{100} \sigma \alpha_3^2 \quad \text{Eq. 21}$$

$$\text{avec texture (110)} : \langle E_{total} \rangle_{110} = K_U \alpha_1^2 + K_1 \left(\frac{7}{32} \alpha_3^4 - \frac{3}{16} \alpha_3^2 \right) + \left(\frac{3}{2} \lambda_{100} + \frac{9}{8} \lambda_{111} \right) \sigma \alpha_3^2 \quad \text{Eq. 22}$$

$$\text{avec texture (111)} : \langle E_{total} \rangle_{111} = K_U \alpha_1^2 + K_1 \left(\frac{7}{12} \alpha_3^4 - \frac{1}{2} \alpha_3^2 \right) + \frac{3}{2} \lambda_{111} \sigma \alpha_3^2 \quad \text{Eq. 23}$$

où $\alpha_{1,2,3}$ sont les cosinus directeur selon x, y, z (α_2 n'apparaît pas dans les équations car on a supposé l'axe de facile aimantation selon Ox)

Ces équations se simplifient en négligeant K_u qui est faible devant les autres contributions ainsi que les termes en α_3^n avec $n > 2$. En effet, on ne considère qu'une faible déflexion (θ_0) de l'aimantation par rapport au plan de la couche donc $\alpha_3 \ll 1$.

Si l'on revient maintenant à notre préoccupation pour les couches minces, il faut tenir compte de l'épaisseur finie, soit

$$\langle E_{total}^\perp \rangle^{CM} = 2\pi M_s^2 - K_{sup}^\perp \alpha_3^2 \quad \text{Eq. 24}$$

En identifiant les termes en α_3^2 , on en déduit les expressions de K_\perp^{sup} pour une couche mince en présence de la contrainte σ :

$$\text{sans texture (rdm)} : K_\perp^{sup} \approx \left(\frac{3}{5} \lambda_{100} - \frac{9}{10} \lambda_{111} \right) \sigma \quad \text{Eq. 25}$$

$$\text{avec texture (100)} : K_\perp^{sup} \approx \frac{3}{4} K_1 + \frac{3}{2} \lambda_{100} \sigma \quad \text{Eq. 26}$$

$$\text{avec texture (110)} : K_\perp^{sup} \approx -\frac{3}{16} K_1 + \left(\frac{3}{2} \lambda_{100} + \frac{9}{8} \lambda_{111} \right) \sigma \quad \text{Eq. 27}$$

$$\text{avec texture (111)} : K_\perp^{sup} \approx -\frac{1}{2} K_1 + \frac{3}{2} \lambda_{111} \sigma \quad \text{Eq. 28}$$

Il est instructif de faire l'application numérique pour le nickel et le fer avec les grandeurs rappelées dans les tableaux 2 et 3, ce qui est grossièrement représentatif d'alliages constitués en majorité de ces éléments respectifs. Nous verrons plus loin des cas concrets d'alliage.

	Ni	Co	Fe
λ_{100}	$-46 \cdot 10^{-6}$		$+20 \cdot 10^{-6}$
λ_{111}	$-24 \cdot 10^{-6}$		$-21 \cdot 10^{-6}$

Tab.3 : valeurs des constantes de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} pour le nickel et le fer (représentatif des alliages riches en ces éléments respectifs)

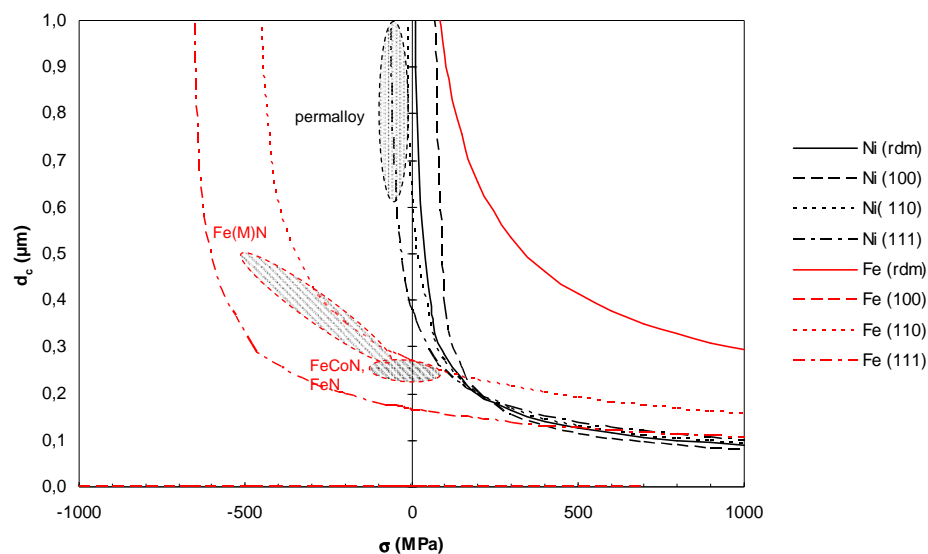


Fig.6 : illustration des dépendances de l'épaisseur critique d_c en fonction d'une contrainte isotrope σ appliquée dans le plan de la couche pour le nickel et le fer sans texture (rdm) et avec les textures (100), (110) et (111), respectivement. (Note : pour plus de lisibilité sur la figure σ est exprimée en MPa et non en Dyne/cm²)

L'examen de la figure 6 suggère plusieurs commentaires.

D'abord, contrairement à une idée reçue, on s'aperçoit que l'absence de contrainte ($\sigma = 0$) ne serait pas une garantie envers le caractère doux. Pour les textures (111) et (110), les épaisseurs critiques théoriques à contrainte nulle sont modérées avec ~ 170 nm et 270 nm, respectivement, pour le fer et ~ 380 nm et 620 nm, respectivement, pour le nickel. C'est le poids de la constante magnétocristalline K_1 au travers de la texture concernée qui fige ici l'épaisseur critique. A l'opposé, l'absence totale de texture (rdm) serait le cas idéal pour lequel il n'y a pas de limitation sur l'épaisseur puisque la moyenne spatiale de K_1 est nulle. Bien sûr, la texture (100) serait l'autre cas extrême où 75% de K_1 contribue directement à l'anisotropie perpendiculaire. Avec cette dernière, il ne serait possible ni pour le fer ni pour le nickel de posséder un caractère doux dans un état non contraint. Notons que seul le cobalt peut y satisfaire puisque K_1 est négatif dans ce cas.

Si l'on regarde maintenant l'effet de σ , on constate que les contraintes jouent un rôle majeur au regard de la formation des « stripe domains ». Pour le fer et le nickel, elles s'avèrent

d'avantage pénalisant lorsqu'elles sont de plus en plus tensiles. En dépit de constantes de magnétostriction très différentes pour ces deux éléments, les tendances envers le signe de la contrainte sont similaires. Ceci s'explique par une contribution globale à la magnétostriction qui reste négative dans les deux cas. Etablir des contraintes compressives est donc déterminant pour repousser l'épaisseur critique au-delà du micron. Dans le cas du fer, on remarque que les valeurs à atteindre demeureraient importantes, jusqu'à ~ -800 MPa avec la texture (111). Le nickel se prêterait mieux à une démarche plus conventionnelle de minimisation des contraintes puisque le comportement doux peut être plus facilement conservé autour du zéro des contraintes.

Dans un souci de réalisme, on peut s'intéresser plus particulièrement à la texture (110) pour les films polycristallins à base de Fe qui sont majoritairement (bcc) et à la texture (111) pour ceux de nickel qui sont plutôt (fcc). Pour ces derniers, la texture (111) serait la plus défavorable des quatre, ce qui est à nuancer puisque l'amplitude de σ requise pour pour $d_c \geq 1 \mu\text{m}$ reste modérée, soit :

$$\sigma_{(111)}^{\text{Ni}} \geq -65 \text{ MPa}$$

Pour le fer, la texture naturelle n'est qu'au deuxième rang des difficultés mais les niveaux de contraintes à atteindre sont beaucoup plus élevés ici, soit :

$$\sigma_{(110)}^{\text{Fe}} \geq -450 \text{ MPa}$$

On peut conclure ici partiellement que les contraintes doivent être une véritable variable d'ajustement qui va de pair avec la taille des cristallites pour satisfaire au caractère doux à des épaisseurs utiles voisines du micron. L'ingénierie des contraintes rejoint donc ici celle de la microstructure au sens des deux premiers *fondamentaux* qu'il sera nécessaire de satisfaire pour accéder à la suite. Il existe de nombreuses possibilités d'ajuster les contraintes (pression partielle de dépôt, température du procédé, différences de coefficients de dilatation avec le substrat ou d'autres couches adjacentes ...). Mais tous ces paramètres influencent aussi grandement les morphologies des grains dont Thornton [7] a discuté la très grande variété qui peut exister dans les couches minces (figure 7). Pour être complet, il faut nous intéresser à une autre contribution à l'épaisseur critique provenant de la transition possible (zone en rouge) entre le caractère équiaxe des grains qui a été supposé jusqu'alors et un caractère beaucoup plus colonnaire.

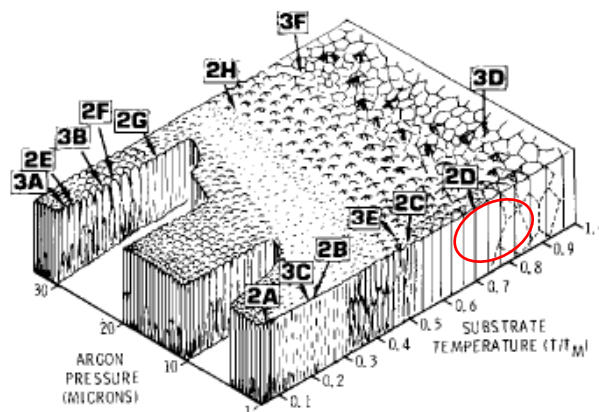


Fig.7 : représentation schématique de la dépendance de la microstructure des couches minces avec la température du substrat et la pression de dépôt par pulvérisation cathodique, d'après Thornton [7]. (Note : la zone en rouge matérialise la transition entre microstructures de type équiaxe et de type colonnaire)

3.3 La morphologie des grains

Malgré la finesse des cristallites qui est requise pour satisfaire au caractère doux ($D < 10$ nm), il est important de prendre en considération la morphologie des grains. De façon générale, tout facteur de forme s'écartant de l'unité est source d'effets magnétostatiques prononcés dès lors que le milieu est discontinu. Cette situation est très probable avec les couches minces ferromagnétiques nanostructurées. La frontière entre les microstructures équiaxe et colonnaire est étroite et doublée de la possibilité de zones intergranulaires très désordonnées. Ces dernières peuvent être facilement paramagnétiques (si amorphe) car la température de Curie y est souvent plus faible que dans les cristallites, voire totalement amagnétiques. Un schéma modèle est donné sur la figure 8.

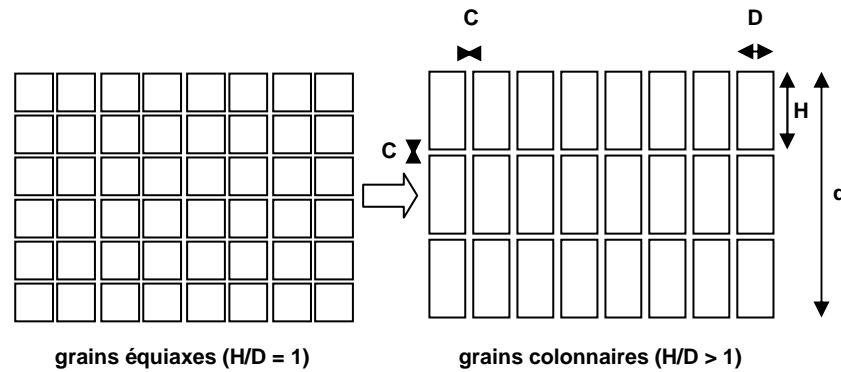


Fig.8 : sections modèles d'une couche mince ferromagnétique d'épaisseur d avec une microstructure de types équiaxe (à gauche) et colonnaire (à droite). D est le diamètre des cristallites, H est la hauteur des cristallites, C est l'épaisseur d'une phase intergranulaire supposée non magnétique ou paramagnétique

On comprend de suite que la microstructure équiaxe est neutre du point de vue de l'accumulation de charges magnétostatiques aux joints de grains alors que la microstructure colonnaire ne l'est pas. Le bilan magnétostatique entre charges accumulées dans le plan et perpendiculairement au film décidera d'une autre possible contribution à l'anisotropie perpendiculaire K_{\perp}^{sup} .

Le problème est apparence simple mais sa résolution est complexe du fait de la distribution périodique (supposée sinusoïdale) des charges qui est à considérer dans les deux directions de l'espace (Ox et Oz) et sur de grandes distances. Fujiwara a étudié cette situation au regard de la formation des « stripe domains » [8] et établit la relation suivante :

$$K_{\perp}^{\text{sup}} \approx 2\pi M_s^{*2} \left(\frac{1}{D} - \frac{1}{H} \right) C \quad \text{Eq. 29}$$

en toute rigueur, M_s^* est l'aimantation volumique diluée par la présence de la phase intercrystalline

Ici encore, l'application numérique est indispensable pour évaluer l'impact sur l'épaisseur critique d_c . La figure 9 revient sur le principe de réduction de la taille des grains dans le plan de la couche en faisant varier D de 100 nm à 10 nm. Par contre, on suppose ici que les grains conservent une hauteur constante (H) fixée à 100 nm. De plus, on considère l'existence d'une possible phase intercrystalline amagnétique d'épaisseur C comprise entre 1 et 3 nm. Ces valeurs représentatives s'appuient sur l'expérience. Les estimations sont faites pour les trois éléments Ni, Co et Fe (valables pour leurs alliages) au regard du besoin que nous avons exprimé pour une aimantation croissante. Or, cette dernière intervient au carré dans l'expression de K_{\perp}^{sup} , ce qui signifie que l'épaisseur critique (Eq. 19) sera directement impactée par cette augmentation puisque $d_c \propto M_s^{-1}$.

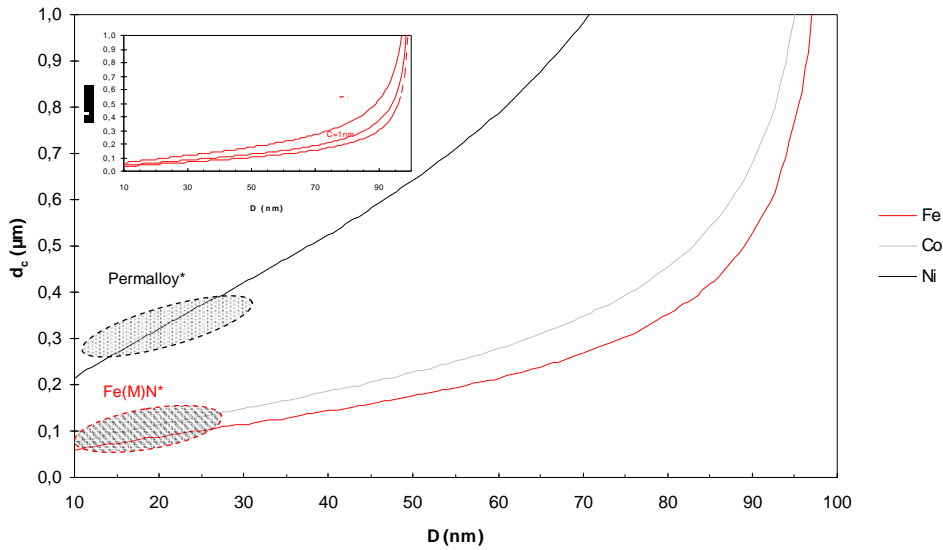


Fig.9 : illustration de l'épaisseur critique d_c pour une couche ferromagnétique à base de nickel, de cobalt et de fer en fonction de la taille des cristallites D , pour une hauteur de cristallite $H = 100$ nm et une phase intercrystalline amagnétique d'épaisseur $C = 1$ nm (C varie de 1 nm à 3 nm dans l'insert pour le cas du fer). Les zones hachurées correspondent à nos observations expérimentales de stripe domains dans des conditions de dépôt dégradées* (voir chapitre 2 et 3)

La figure 9 montre clairement que réduire la taille des cristallites dans le plan conformément au premier des fondamentaux ($D \leq 10$ nm) peut impacter très vite l'épaisseur utile d'une couche mince ferromagnétique dont la microstructure naturelle est préférentiellement colonnaire. Pondéré par le poids de l'aimantation au regard des effets magnétostatiques, les épaisseurs critiques peuvent devenir facilement inférieures 100 nm. Cette limitation tient à l'existence supposée d'une fine épaisseur intercrystalline amagnétique C . On peut voir sur l'insert de la figure 9 que le poids de C est prépondérant devant le facteur de forme des grains D/H . On doit bien sûr rester ici dans la limite où le couplage d'échange intergranulaire reste fort sans quoi le caractère ferromagnétique disparaîtrait totalement. La formation d'une telle phase est relativement récurrente lors de la mise au point des procédés de dépôt et le mécanisme le plus fréquemment évoqué dans la littérature est l'oxydation des joints de grains. D'autres mécanismes sont possibles dont la formation d'une matrice intercrystalline amorphe dont la température de Curie serait plus faible que celle de la phase cristalline, c'est ce que nous verrons au chapitre 2.

On voit donc qu'ici la préservation du caractère magnétique de la phase intergranulaire est primordiale. Dans la pratique, ceci pourrait se traduire par éviter toute oxydation ou formation de précipités et autre phase non magnétique aux joints de grains. Nous verrons qu'une alternative peut consister à supprimer ou rompre ce caractère colonnaire en ayant recours à la lamination des couches par un matériau tiers.

3.4 « Fondamentaux » N°2

A l'issue de ces discussions, force est de constater que le prix à payer pour la conservation du caractère doux à des épaisseurs utiles de l'ordre du micron est élevé. Ce prix est double. Il concerne, d'une part, la nécessité de contrôler les contraintes subies par les couches (en signe et en amplitude) et, d'autre part, la nécessité de préserver la qualité magnétique des joints de grains. Ceci est particulièrement vrai lorsque le mécanisme de

croissance des couches est propice au caractère colonnaire et c'est le cas le plus fréquent en pulvérisation cathodique.

Le deuxième des fondamentaux se traduit par la condition : $K_{\perp}^{\text{sup}} < K_u$. Il regroupe les conditions subsidiaires à la conservation du caractère doux ($H_c < 1 \text{ Oe}$) combiné à une forte aimantation ($4\pi M_s > 1 \text{ T}$) tout en cherchant à augmenter l'épaisseur utile des couches minces ferromagnétiques ($d > 0.1 \mu\text{m}$). Ces conditions portent sur la contrainte σ , la texture des grains, leur morphologie D/H et la nature des joints de grains C.

- σ doit devenir un paramètre d'ajustement à part entière au regard des constantes de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} qui dépendront du choix de la composition de l'alliage et aussi de la texture du film.
- D/H doit être maintenu le plus proche de l'unité (c'est-à-dire tendre vers une microstructure équiaxe).
- C doit être maintenu le plus proche de zéro (c'est-à-dire tendre vers une microstructure homogène où la nature des joints de grains ne diffère pas de celle de l'alliage).

C'est la difficulté la plus grande à laquelle sont confrontés ceux qui cherchent à répondre aux exigences d'applications utilisant des couches minces ferromagnétiques douces. Les modèles de l'épaisseur critique développés ici peuvent servir de support à l'ingénierie de ces couches minces et permettre d'anticiper les bons choix technologiques (choix du substrat, de la technique de dépôt, des empilements technologiques ...).

4. « Fondamentaux » n°3 : perméabilité dynamique

Les *fondamentaux* n° 1 et 2 sont les préalables à la finalité d'adapter les couches minces ferromagnétiques douces aux hyperfréquences. Ils posent les conditions à H_c nécessairement faible et à son prolongement à des épaisseurs utiles. Mais, ils reposent sur des considérations statiques. Je propose donc au lecteur de terminer ce chapitre en traitant des aspects dynamiques. Le troisième des *fondamentaux* concerne donc la notion de perméabilité dynamique complexe $\mu(f)$. C'est une grandeur transverse indispensable au lien entre science des matériaux et électromagnétisme. L'originalité porte ici sur le recours au ferromagnétisme pour les hyperfréquences alors que l'état de l'art reste établi avec les oxydes ferrimagnétiques (ferrites, grenats ...). Nous attendons un gain très significatif sur la partie réelle de $\mu(f)$. Là se trouve la justification à la course aux hautes aimantations ($> 1\text{T}$). Une plus grande latitude dans l'ajustement de la partie imaginaire de $\mu(f)$ est également possible. C'est un autre avantage du ferromagnétisme en couches minces. Il offre plus de degrés de liberté face au problème d'autopolarisation des ferrites qui demeure incomplètement résolu. Une partie de la réponse est ici. L'établissement du lien entre couches minces ferromagnétiques et ondes électromagnétiques en est le point clé. En clair, cela consiste à pouvoir injecter les équations qui décrivent la dynamique de l'aimantation directement dans les relations fondamentales des hyperfréquences (à travers des outils numériques la plupart du temps). Je pousse l'idée que les couches minces ferromagnétiques peuvent aujourd'hui faire partie intégrante de la boucle de conception des dispositifs hyperfréquences. En offrant la possibilité à la communauté des hyperfréquences de manipuler $\mu(f)$ à des amplitudes inégalées, il devient possible de reporter une part de la fonction hyperfréquence du composant sur le substrat (on parle de fonctionnalisation des matériaux). L'accès à une perméabilité élevée, à l'autopolarisation et à une grande modularité dans cette gamme de fréquence permet d'envisager de lever les verrous à la miniaturisation des inductances, à la réduction de la longueur d'onde guidée pour les filtres et les antennes, à l'adaptation d'absorbants électromagnétiques en bandes sélectives

4.1 Rappels

Mais pour cela, il faut avant tout une description fidèle de $\mu(f)$ doublée d'un formalisme simple pour en permettre l'exploitation à des fins prédictives. On s'appuiera naturellement sur la forme linéarisée de l'équation fondamentale de Landau, Lifchitz et Gilbert (LLG) [9], ce que l'on développe communément pour les faibles excitations et dans l'hypothèse du *macro spin*. C'est sur cette hypothèse que nous allons nous concentrer. Les limites à sa validité seront très étroites en réalité. Elles concernent tout ce qui va à l'encontre de l'uniformité de l'aimantation dans le plan des couches dont les « ripples » et les contributions à K_{\perp}^{sup} bien sûr, mais pas seulement. Le respect des deux premiers *fondamentaux* est suffisant à cet égard. Par contre, ils ne s'appliquent qu'aux couches continues sans autre précaution. Je montrerai que les conséquences de l'intégration à des échelles microniques ici peuvent effectivement nous en écarter très vite. D'autres conditions restrictives vont donc rentrer en jeu. La véracité de la modélisation du comportement des microdispositifs à venir en dépendra. Plusieurs solutions seront abordées dans ce manuscrit

Revenons sur l'équation de la dynamique de l'aimantation qui est une équation vectorielle différentielle fortement non linéaire (Eq. 30). Le premier terme traduit la relation entre les moments cinétique et magnétique qui conduit à la précession libre de l'aimantation. Il fait intervenir γ (en rad/s/Oe) la constante gyromagnétique, G (en erg/cc) l'enthalpie libre du système qui regroupe toutes les contributions magnétiques non dépendantes du temps et H (en Oe) le champ magnétique appliqué variable dans le temps. Le second terme introduit la notion d'amortissement à travers le terme phénoménologique α (sans dimension et $\ll 1$). La linéarisation de cette équation consiste à considérer que H est constitué d'une partie constante H_{DC} et d'une partie variable $h(t)$ dont l'amplitude est infiniment petite. On y associe la définition de la susceptibilité magnétique χ sous sa forme tensorielle générale (Eq. 34).

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \wedge (-\vec{\nabla}_M G + \vec{H}) + \frac{\alpha}{M_S} \left(\vec{M} \wedge \frac{d\vec{M}}{dt} \right) \quad \text{Eq. 30}$$

$$G = -\vec{H}_{\text{eff}} \cdot \vec{M} \quad \text{Eq. 31}$$

$$\vec{H} = \vec{H}_{\text{DC}} + \vec{h} \text{ avec } \vec{h}(t) = \vec{h}_a \exp(j\omega t) \quad \text{Eq. 32}$$

$$\left[\frac{d\vec{M}}{dt} \right] = [\chi] \left[\frac{d\vec{h}}{dt} \right] \quad \text{Eq. 33}$$

On trouve maintenant la justification aux deux premiers *fondamentaux*. Minimiser les fluctuations spatiales de l'aimantation au sens d'Hoffmann ($S < 10^{-2}$ erg/cm²) et éviter toute contribution annexe à K_{\perp}^{sup} ($d < d_c$) est le prix à payer pour se ramener au cas idéal d'une couche mince uniaxiale et uniformément aimantée. Dès lors, on peut traiter le cas simple d'une excitation $h(t)$ dont la direction (Ox) est perpendiculaire à celle de K_u (Oy). Dans ces conditions, on peut considérer que les contributions à G sont principalement l'anisotropie induite K_u et l'anisotropie de forme K_d dans la limite de $K_u > K_d$. Le tenseur de susceptibilité χ ou plus communément le tenseur de perméabilité μ se réduit à

$$[\mu] = [1 + 4\pi\chi] = \begin{bmatrix} 1 & & \\ & \tilde{\mu}(\omega) & \\ & & 1 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. 34}$$

où l'expression complexe de $\mu(\omega)$ prend la forme

$$\tilde{\mu} = 1 + \frac{\omega_m (\omega_k + \omega_d + \omega_m + j\omega\alpha)}{\Delta} \quad \text{Eq. 35}$$

$$\text{avec } \omega_k = \gamma \frac{2K_u}{M_s}, \quad \omega_d = \gamma 2\pi M_s (N_y - N_x), \quad \omega_m = \gamma 4\pi M_s \text{ et } \Delta = -\omega^2 + \frac{(\omega_k + j\omega\alpha)}{(\omega_m + j\omega\alpha)}$$

N_x et N_y sont les coefficients démagnétisant qui peuvent être approchés par l'expression proposée par Aharoni [10]

En décomposant les parties réelle et imaginaire, on arrive aux expressions utiles

$$\mu' = 1 + \frac{\Re_{\Delta} \omega_m (\omega_k + \omega_d + \omega_m) + \Im_{\Delta} \omega_m \omega\alpha}{\Re_{\Delta}^2 + \Im_{\Delta}^2} \quad \text{Eq. 36}$$

$$\mu'' = -\frac{\Re_{\Delta} \omega_m \omega\alpha - \Im_{\Delta} \omega_m (\omega_k + \omega_d + \omega_m)}{\Re_{\Delta}^2 + \Im_{\Delta}^2} \quad \text{Eq. 37}$$

$$\text{avec } \Re_{\Delta} = \omega^2 (1 + \alpha^2) + \omega_m (\omega_k + \omega_d) \text{ et } \Im_{\Delta} = \omega\alpha (\omega_m + \omega_k + \omega_d) \quad \text{Eq. 38}$$

à celle de la pulsation à la résonance ω_r

$$\omega_r = \sqrt{\omega_m (\omega_k + \omega_d)} \quad \text{Eq. 39}$$

à celle de la perméabilité quasi-statique μ'_{dc} et du maximum de pertes à la résonance μ''_{max}

$$\mu'_{dc} - 1 = \frac{\omega_m}{\omega_k + \omega_d} \quad \text{et} \quad \mu''_{max} = \alpha \times \omega_m^3 \frac{\omega}{\omega_r^4} \quad \text{Eq. 40}$$

On est devant la description mathématique la plus simple de la perméabilité dynamique qui peut être reproduite par des fonctions de Lorentz. La figure 10 en donne une représentation pour des couches minces idéales de nickel, de cobalt ou de fer, dans la logique des illustrations précédentes.

Au regard de ces courbes, le lecteur trouve la raison première à la motivation qui anime ce manuscrit pour les très fortes aimantations. Il s'agit d'étendre simultanément le caractère perméable des couches minces dans les deux directions qui sont respectivement l'amplitude de la partie réelle de la perméabilité et la valeur de la fréquence de résonance gyromagnétique propre (en champ nul).

C'est encore plus explicite sur la figure 11 qui retranscrit la relation qui lie la partie réelle de la perméabilité et la fréquence de résonance (Eq. 41), ce qui est à rapprocher de la classique loi de Snoek pour les ferrites.

$$\mu'_{dc} - 1 = \left(\frac{\omega_m}{\omega_r} \right)^2 \quad \text{Eq. 41} \quad \rightarrow \quad \mu'_{dc} - 1 = \frac{4\pi}{3} \frac{\omega_m}{\omega_r} \quad (\text{loi de Snoek})$$

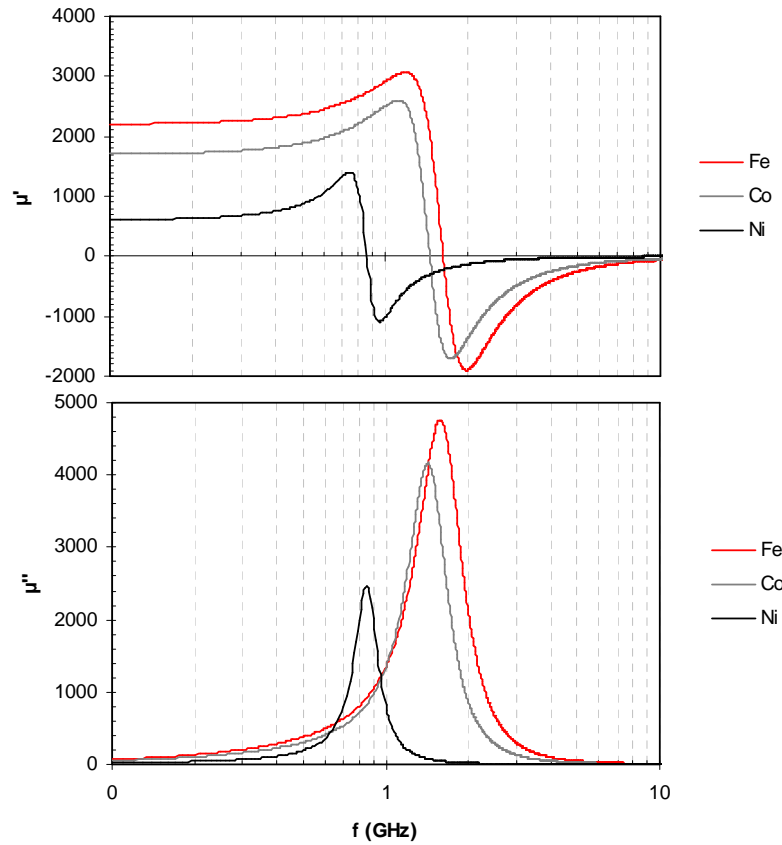


Fig.10 : illustration des dépendances théoriques des parties réelle μ' et imaginaire μ'' de la perméabilité à champ nul ($H_{dc} = 0$) pour une couche mince ferromagnétique uniaxiale à base de nickel, de cobalt et de fer. Note : pour les calculs on prend $H_k=10$ Oe, $\gamma=2.210^7$ rad/s/Oe et $\alpha = 10^{-2}$.

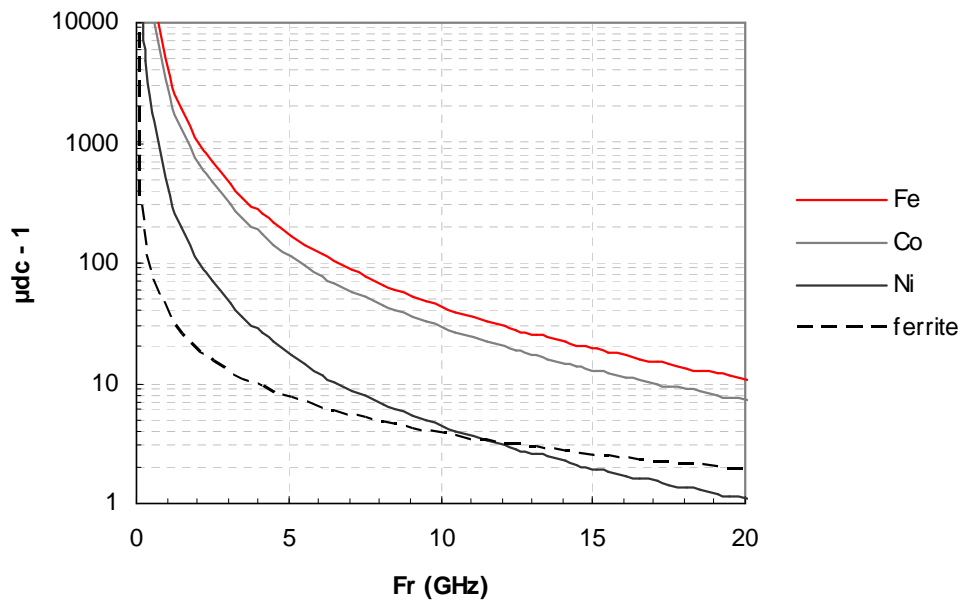


Fig.11 : illustration de la dépendance théorique de la perméabilité quasi-statique μ_{dc} avec la fréquence de résonance gyromagnétique F_r (loi de Snoek étendue) pour une couche mince ferromagnétique uniaxiale à base de nickel, de cobalt et de fer. Note : pour comparaison on a également tracé la loi de Snoek d'un ferrite en couche mince (hexaferrite de baryum)

On pose donc l'idée que les très fortes aimantations propres au ferromagnétisme doivent permettre d'étendre d'un à plusieurs ordres de grandeur les niveaux de perméabilité connus aujourd'hui en hyperfréquences. Un second enjeu porte sur les moyens de décaler très largement la fréquence de résonance F_r vers le haut du spectre (20 GHz) par des moyens annexes. Nous proscrivons le recours à H_{dc} qui n'est pas compatible avec nos prérogatives d'intégration et de consommation modérée (< qq. mA) en technologie silicium. Les solutions s'orienteront donc sur des contributions intrinsèques à l'enthalpie G de la couche mince dont l'énergie démagnétisant (chapitre 2) et l'énergie de couplage d'échange à l'interface avec une couche antiferromagnétique (chapitre 3).

A ce stade, nous avons répondu au besoin d'une représentation robuste et flexible de la perméabilité et fixé les conditions à son extension en amplitude et en fréquence. Nous devons voir maintenant où sont les limites à cette description.

4.2 Structure en domaines

Nous devons garder à l'esprit qu'en pratique une couche mince ferromagnétique uniaxiale aura des dimensions forcément finies. Ici, nous devons nous intéresser à la conséquence d'une dimension finie W selon l'axe d'anisotropie K_u . En effet, réduire la dimension dans la direction de l'axe facile conduit inévitablement à l'établissement d'une structure en domaines pour assurer la fermeture du flux magnétique. Cette dernière prendra le plus souvent la forme communément observée d'une répartition régulière de domaines principaux allongés selon l'axe facile et de largeur D_w . Ils sont terminés par des domaines secondaires triangulaires dits domaines de fermeture de hauteur $D_w/2$. Les premiers sont séparés par des parois à 180° et les derniers par des parois à 90° .

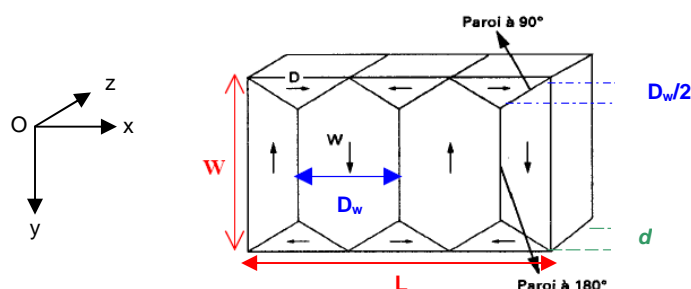


Fig.12 : modèle de la structure en domaines d'une couche mince ferromagnétique uniaxiale d'épaisseur d , de largeur W et de longueur L , avec axe d'anisotropie parallèle à L . D_w correspond à la largeur des domaines principaux et $D_w/2$ à la hauteur des domaines de fermeture

De façon très classique, on établit les conditions d'équilibre de cette structure en sommant les énergies des parois à 180° et à 90° et l'énergie d'anisotropie uniaxiale ce qui, en annulant la dérivée, donne

$$D_w = \sqrt{\frac{2\sigma_{180} W}{K_u}} \quad \text{Eq. 42}$$

On constate que D_w ne dépend que de la densité d'énergie des parois à 180° ($\sigma_{180} = 2.4 \text{ erg/cm}^2$), de la largeur du motif W et de la constante d'anisotropie K_u . Réduire W entraîne une réduction de la taille des domaines principaux et aussi des domaines de fermeture. Le nombre de domaines augmente. Les tendances sont tracées sur la figure 13 pour le nickel, le cobalt et le fer (ou leurs alliages) en supposant une couche d'épaisseur $1 \mu\text{m}$ et dont le champ d'anisotropie H_k vaut 10 Oe . Le rapport des surfaces occupées respectivement par les

domaines principaux et les domaines de fermeture peut s'inverser aussi. Par exemple, il est révélateur d'évaluer ces surfaces pour un motif de fer. On trouve une occupation à 75 % par les domaines principaux pour $W = 100 \mu\text{m}$ mais seulement 40 % pour $W = 20 \mu\text{m}$. Je ferai remarquer que pour $D_w > W$, la condition d'équilibre n'est plus remplie et l'aimantation se renverse spontanément selon la plus grande dimension (Ox ici). Pour $D_w = W$, on atteint en théorie une structure en domaine ultime dite en losange (ligne en pointillée sur la figure 13) mais très peu stable dans la réalité.

La conséquence à l'établissement de cette structure en domaine pour sur des motifs étroits est donc double : la densité de parois augmente très vite et la part homogène de l'aimantation se réduit considérablement. On comprend alors que la dynamique s'en trouvera affectée puisque la contribution liée au déplacement des parois peut l'emporter devant celle associée à la rotation de moments. L'hypothèse du *macro spin* peut donc devenir minoritaire à l'échelle du micromotif et la représentation Lorentzienne de $\mu(f)$ très partielle. Quantitativement, elle n'est plus représentative que du volume cumulé des domaines principaux et de la résonance ferromagnétique qui y siège. Mais, d'autres phénomènes résonants peuvent entacher le comportement en fréquence et le plus souvent de façon prématuré.

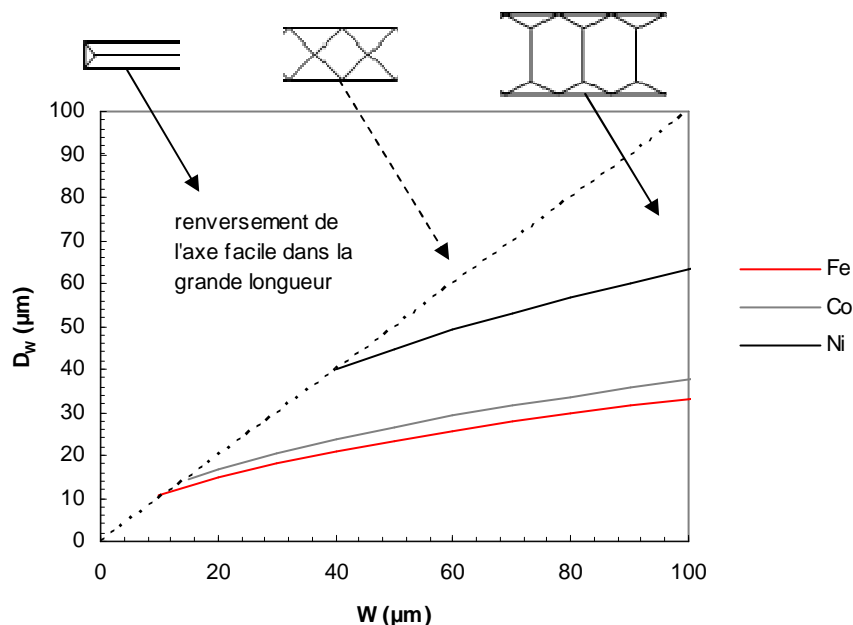


Fig.13 : illustration de la dépendance théorique de la largeur des domaines principaux D_w pour une couche mince ferromagnétique uniaxiale à base de nickel, de cobalt et de fer. Note : la ligne en pointillés indique la limite de stabilité de la structure avec domaines de fermeture ($D_w = W$).

4.3 Résonance de domaines

En présence des domaines de fermeture, la simplicité du cas dynamique uniforme s'estompe en partie. En effet, si la direction de $h(t)$ n'est pas parfaitement colinéaire à celle d'une paroi, il se crée un couple qui tend à déplacer cette dernière. Cela peut être le cas si l'angle entre l'axe facile (Oy) et l'axe d'excitation n'est pas exactement 90° (fréquent en pratique mais aux conséquences modérées). Mais, le problème vient principalement des parois des domaines à 90° qui font un angle naturel de 45° avec la direction d'excitation. Dans ces conditions, l'alternance de $h(t)$ selon Ox entraîne un déplacement significatif Δy des parois des domaines à 90° qui grossissent et diminuent alternativement fonction du sens de l'excitation (figure 14).

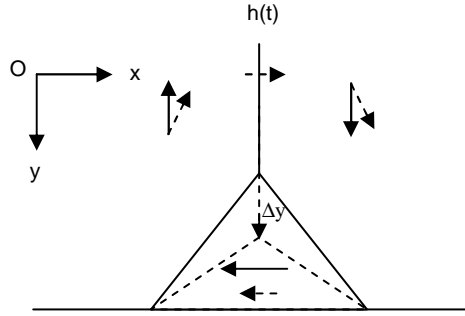


Fig.14 : illustration du déplacement Δy selon des parois d'un domaine de fermeture en présence d'une excitation $h(t)$ appliquée selon Ox (rappel : la direction d'anisotropie K_u est selon Oy).

Dans l'absolu, il serait nécessaire de résoudre les équations différentielles couplées de ce système mais il n'existe pas de solution analytique simple. Par contre, le calcul de la résonance des domaines à 90° peut être traité séparément comme un oscillateur harmonique de masse équivalente m_w (en supposant les parois de type Bloch), de raideur k et de constante d'amortissement β .

L'équation prend la forme classique suivante

$$m_w \ddot{y} + \beta_w \dot{y} + ky = 2\vec{h} \cdot \vec{M} \quad \text{Eq. 43}$$

et admet pour fréquence de résonance propre

$$F_0 = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{k}{m_w} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 44}$$

et pour fréquence de relaxation

$$F_c = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{k}{\beta_w} \right) \quad \text{Eq. 45}$$

En toute rigueur, la fréquence de résonance effective du système correspond à

$$F_r = F_0 \left[1 - \left(\frac{F_0}{2F_c} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 46}$$

Si $F_0 \ll F_c$, cette expression se réduit à $F_r = F_0$ et on est bien face à un comportement résonant des parois. A l'opposé si $F_c < F_0/\sqrt{2}$, on est dans le cas d'un amortissement critique où les parois relaxent toute leur énergie avant de pouvoir rentrer en résonance.

Il convient maintenant d'évaluer ces deux termes afin de les comparer à la fréquence de résonance gyromagnétique du mode uniforme. Pour cela, il faut avoir au préalable les expressions de m_w , β_w et k .

Smith [10] a calculé les expressions pour m_w et β_w qui sous leur forme simplifiée peuvent s'écrire

$$m_w \approx \frac{1}{2} \frac{E_{180^\circ}}{8\pi\gamma^2 A} \quad \text{Eq. 47}$$

$$\beta_w \approx \frac{1}{2} \frac{\alpha M_s E_{180^\circ}}{2\gamma A} \quad \text{Eq. 48}$$

où E_{180° est l'énergie des parois à 180° (~ 0.25 erg/cm), A la constante d'échange ($\sim 10^{-6}$ erg/cm) et γ la constante gyromagnétique ($\sim 1.8 \cdot 10^7$ Hz/Oe)

La vraie difficulté repose sur le calcul de k dont la définition reste phénoménologique. Smith en propose une expression approchée d'après une résolution numérique que je reprends ici

$$k \approx 4\pi M_s^2 N_y \quad \text{Eq. 49}$$

où N_y est le coefficient de champ démagnétisant selon K_u que l'on peut calculer d'après Aharoni [9]

Les résultats de l'application numérique sont présentés sur la figure 15, à rapprocher des hypothèses de la figure 13. Au préalable, on a vérifié que F_c (qq. 100^{aines} de GHz) est bien plus grand que F_0 donc on est bien devant un comportement résonant des parois des domaines de fermeture. Si l'on reprend un motif représentatif de largeur $100 \mu\text{m}$, cette résonance a lieu typiquement entre 30 et 100 MHz. Elle augmente rapidement en réduisant W .

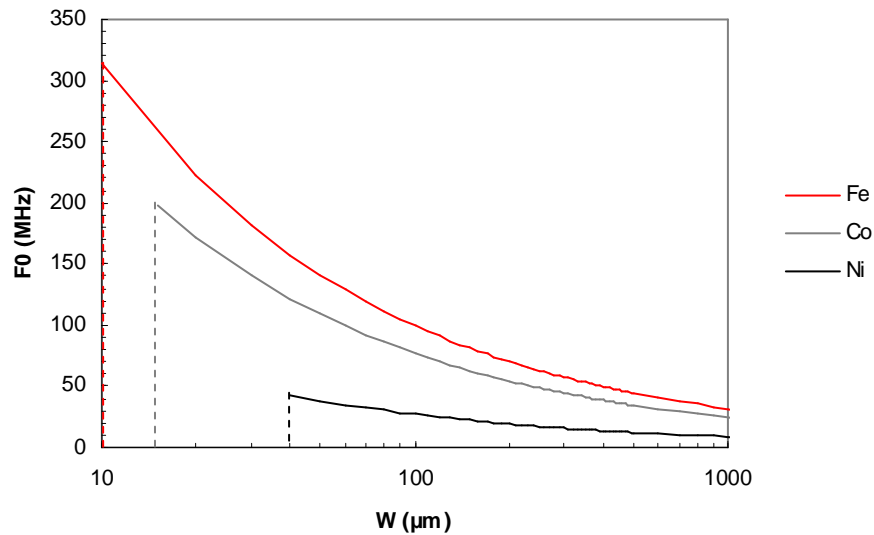


Fig.15 : illustration de la dépendance théorique de la largeur des domaines principaux D_w pour une couche mince ferromagnétique uniaxiale à base de nickel, de cobalt et de fer. Note : la ligne en pointillés indique la limite de stabilité de la structure avec domaines de fermeture ($D_w = W$).

Reprenons ici l'exemple précédent du fer, pour $W = 100 \mu\text{m}$ la perméabilité effective sera pondérée du rapport de la surface occupée par les domaines principaux, soit 75 % dès 100 MHz et 40 % au-delà de 200 MHz pour $W = 20 \mu\text{m}$.

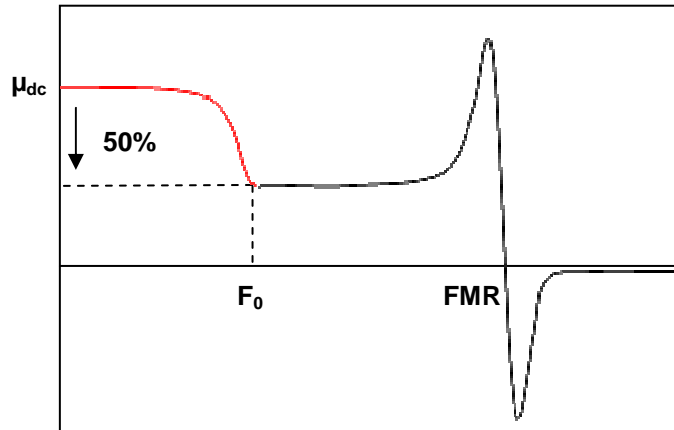


Fig.16 : illustration de principe de la réduction de la perméabilité effective après la résonance des domaines de fermetures (on suppose ici que les domaines de fermeture occupent 50 % de la surface du motif)

L'illustration précédente est révélatrice d'une des conséquences la plus importante liée à la réduction des dimensions avec les microsystèmes et permet de conclure cette partie. Si l'on est amené à réduire la dimension dans la direction de l'axe d'anisotropie ($W \ll L$), les domaines de fermeture deviennent fortement pénalisant du point de vue de la dynamique. Ils introduisent une « coupure » à basse fréquence doublée de pertes en excès très élevées dans la pratique, rendant le modèle uniforme inadéquat dans la partie basse du spectre. Au-delà, le comportement dynamique se raccorde avec le modèle uniforme mais au prorata de la surface homogène de l'aimantation uniquement. Donc, sans précaution particulière, le spectre dynamique d'un micro motif établi selon le modèle uniforme (champ démagnétisant inclus) peut voir en réalité la partie réelle de sa perméabilité amputée jusqu'à plus de 50 % et de façon très prématurément, c'est à dire dès quelques centaines de MHz. Bien souvent, nous n'aurons pas le choix quant à un facteur de forme plus favorable $W \gg L$ (voir figure 17) et l'enjeu portera alors sur l'élimination des domaines de fermeture dont l'aimantation sera par défaut colinéaire au champ d'excitation.

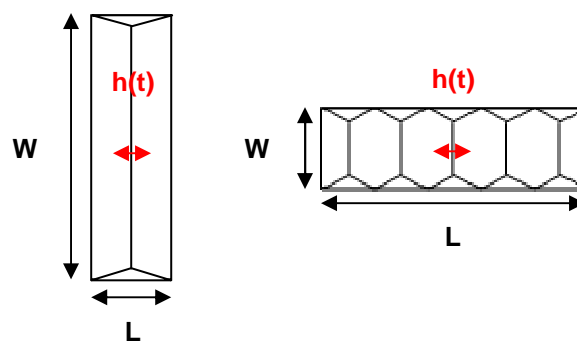


Fig.17 : facteur de forme W/L et direction d'excitation magnétique $h(t)$ pour un micromotif avec anisotropie uniaxiale longitudinale (à gauche) et transverse (à droite)

4.4 Fondamentaux n°3 : perméabilité dynamique des microstructures

Le troisième des fondamentaux concerne donc l'éradication des domaines de fermeture dans les microsystèmes magnétiques pour les hautes fréquences. En effet, ils constituent une source de limitation bien trop importante au caractère perméable comme nous venons de le démontrer. Ils sont également la cause de pertes en excès

préjudiciables au comportement dynamique que l'on souhaite faiblement dissipatif. Le choix d'un facteur de forme contraignant ($W \gg L$) peut être une alternative, mais de portée limitée. Dans le chapitre 3, je conduirai le lecteur vers une solution beaucoup plus générique pour éliminer la formation de ces domaines en jouant sur le couplage dipolaire entre plusieurs couches ferromagnétiques. Ceci nous écartera de la notion de couche ferromagnétique unique au sens où nous l'avons considérée jusqu'à présent. Nous irons vers des systèmes multicouches plus complexes où alterneront couches ferromagnétiques douces et couches amagnétiques. Ce sera un prix supplémentaire à payer pour conserver, à l'échelle des micromotifs, le comportement optimal à haute fréquence. Ce dernier s'appuie sur une description Lorentzienne de la perméabilité complexe, établie sur les bases d'un principe de rotation cohérente de l'aimantation. Le lien que nous nous sommes proposé d'établir entre perméabilité et hyperfréquences à des fins d'intégration est à ce niveau de difficulté.

5. Conclusion

En ayant à l'esprit ces trois *fondamentaux*, on peut maintenant bâtir une stratégie de développement. Elle vise à faire se rejoindre les communautés historiquement séparées du ferromagnétisme et des hyperfréquences. Il s'agit en clair d'amener les couches ferromagnétiques douces au caractère potentiellement hautement perméable, au-delà de leur état de l'art, c'est-à-dire de les hisser maintenant au rang de véritables matériaux pour les hyperfréquences (et cela malgré leur caractère conducteur). De plus, l'enjeu porte sur la possibilité de faire entrer l'étape d'élaboration comme partie intégrante du flux de conception pour les composants et systèmes radiofréquences. Il est donc nécessaire de disposer d'un modèle le plus universel possible pour la perméabilité dynamique et qui reste valable aux échelles de l'intégration. Les grandes règles suivantes devront être respectées :

1. Condition à l'anisotropie évanescence : $\langle K_{\text{eff}} \rangle \neq 0$

- affiner la taille des grains sous 10 nm
- réduire la constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 par un moyen annexe
- pour assurer au préalable le caractère doux ($H_c < 1$ Oe).

2. Condition à l'épaisseur critique : $K_{\perp}^{\text{sup}} < K_u$

- manipuler les contraintes σ ,
- maîtriser le facteur de forme des grains (éviter la croissance colonnaire)
- éviter l'oxydation des joints de grains (où toute formation de phase à $T_c < T_{\text{amb}}$)

3. Conditions à la perméabilité dynamique des micromotifs :

- éliminer les domaines de fermeture
- assurer une rotation cohérente de l'aimantation

La stratégie de développement est maintenant illustrée ci-dessous. C'est une feuille de route qui indique les deux directions à suivre pour que le potentiel des couches ferromagnétiques douces pour les hyperfréquences soit une réalité. L'axe vertical reprend la notion déjà posée de « course aux aimantations », garante du caractère perméable à haute fréquence ; l'axe horizontal pose une autre contrainte qui est celle de la résistivité. En effet, le ferromagnétisme oppose les fortes aimantations aux faibles résistivités (contrairement au ferrimagnétisme), du fait du caractère métallique des alliages correspondants. Sans y revenir, il est évident que c'est une contrainte au regard de l'effet de peau. La tendance générale sera donc à l'augmentation des résistivités sans compromettre les valeurs d'aimantation élevées. Des compromis seront possibles comme nous le verrons. Je reprendrai ce graphe en

Chapitre 2 : Le Permalloy

1. Introduction
2. Doux par nature
3. Epaisseur critique
4. Dynamique et intégration
5. Principe de l'Edge Curling Wall (ECW)
6. Réalisations technologiques
7. Alternative au Permalloy
8. Conclusion

1. Introduction

Le Permalloy ou $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ fait partie des rares exceptions pour lesquelles il y a eu continuité entre état de l'art historique des matériaux ferromagnétiques doux massifs et celui des couches minces. De plus, cet alliage bénéficie en couche mince de techniques d'élaboration doubles : par voie chimique (électrolyse) et par voie physique (dépôt en phase vapeur), ce qui en fait la couche mince ferromagnétique de loin le plus utilisée aujourd'hui dans les laboratoires et dans l'industrie. Je reviendrai sur ses propriétés mais il est important de le positionner tout de suite sur la feuille de route que nous avons établie.

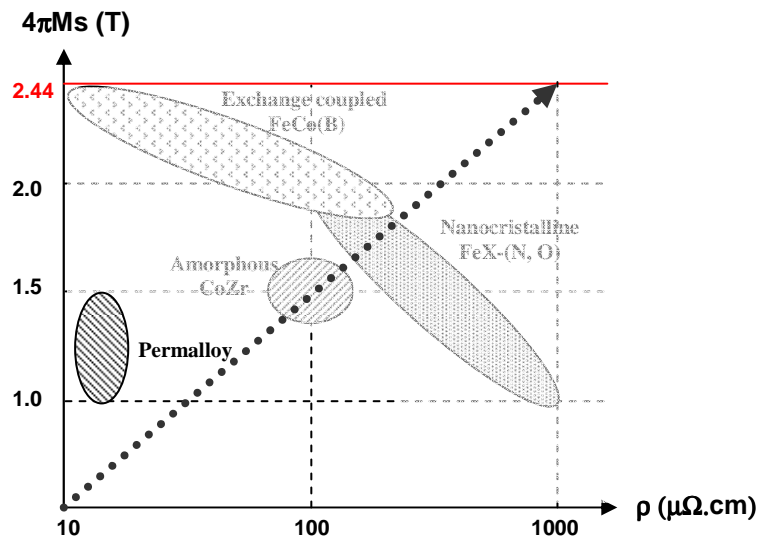


Fig.1: feuille de route pour les couches ferromagnétiques douces pour la RF, d'après nos travaux

Le permalloy ne fait pas partie intégrante des matériaux que nous destinons aux hyperfréquences. Il n'occupe que la partie basse de notre feuille de route du fait d'une aimantation à saturation modérée (1T) et d'une résistivité faible ($20 \mu\text{Ohm.cm}$). Néanmoins, c'est la couche mince qui bénéficie du meilleur recul en termes d'intégration en particulier dans les microsystèmes inductifs (têtes de lecture, inductances, microfluxgates ...) et y compris dans nos propres travaux. C'est la raison pour laquelle je reviendrai dessus dans la première partie de ce chapitre. J'illustrerai notamment deux points : l'épaisseur critique, pour laquelle on n'attend pas a priori de limitation forte du fait d'un comportement intrinsèquement non magnétostrictif, et la résonance des domaines de fermeture qui a été particulièrement bien démontrée dans ce contexte. Les résultats que j'exploiterai sont principalement issus des travaux de thèse de Rachid Hida (2006) et de Bastien Orlando (2007), agrémentés de résultats complémentaires prélevés au fil de mes différentes activités.

2. Doux par nature

Le Permalloy en couches minces déroge aux contraintes du premier des *fondamentaux* car il est doux par nature ($H_c < 1 \text{ Oe}$). C'est du à la métallurgie spécifique des alliages de NiFe dont les grandes tendances sont rappelées sur la figure 2. L'ajustement de la composition permet sur une plage étendue de réduire la constante magnétocristalline K_1 jusqu'à une valeur quasi nulle ($\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$). Dans la pratique on décale très légèrement la composition vers $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ où K_1 reste modérée ($\sim -3 \cdot 10^3 \text{ erg/cc}$) afin d'annuler en plus λ_{111} et de minimiser λ_{100} . Le Permalloy en couches minces possède également naturellement une anisotropie induite ($H_K \sim 3 \text{ à } 6 \text{ Oe}$) lorsqu'il est déposé sous champ magnétique statique, ce

qui correspond à la très grande majorité des cas. On peut juste faire remarquer que du fait de la présence de K_u , le champ coercitif descend rarement en dessous de 10^{-1} Oe au mieux contrairement au Permalloy massif où les valeurs peuvent être beaucoup plus basses (10^{-2} Oe). Ce commentaire est rapproché de la figure 1 du chapitre 1. Dans ces conditions, on voit très vite que les conditions théoriques au caractère doux selon Hoffmann ($\langle K_{eff} \rangle$) sont remplies dès $D = 1000$ nm pour la taille des cristallites (or dans la réalité D n'excède pas qq. 100^{aines} en couches minces).

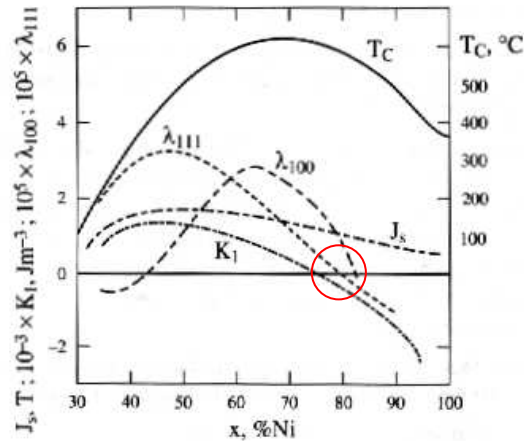


Fig. 2: Propriétés magnétiques des alliages NiFe en fonction de la composition [1]

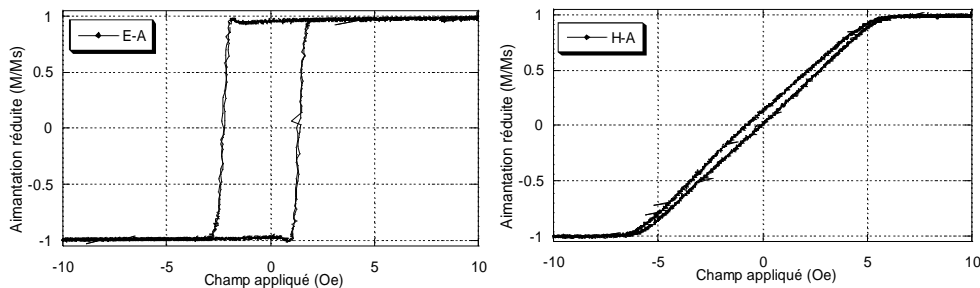


Fig. 3 : Cycles d'hystérésis suivant les axes facile et difficile pour une couche de $Ni_{80}Fe_{20}$ d'épaisseur $0,3 \mu m$ déposée par PVD en présence d'un champ magnétique statique (Thèse R. Hida)

Le caractère doux du Permalloy en couches minces se vérifie donc assez facilement quelle que soit la technique de dépôt (électrochimique ou en phase vapeur) et le rend a priori peu tributaire des conditions de d'élaboration, du moins à épaisseur modérée ($< 1 \mu m$). La figure 2 montre un exemple typique de courbes d'hystérésis pour un film d'épaisseur $300nm$ réalisé par PVD sous champ.

3. Epaisseur critique

Il n'y a donc aucune difficulté au regard du premier des fondamentaux ($\langle K_{eff} \rangle$) et il devrait en être de même concernant le deuxième (K_{\perp}^{sup}) qui décide de l'épaisseur critique d_c . En effet, les couches minces de $Ni_{80}Fe_{20}$ sont également remarquables dans le sens où elles sont parfaitement insensibles aux contraintes isotropes qu'elles pourraient subir. Revenons sur l'explication : cela est du au fait que λ_{111} est nul pour cette composition comme on le voit sur la figure 2. De plus, la croissance naturelle en couche mince (phase cfc) conduit à la texture préférentiellement $\langle 111 \rangle$. Or, au regard de l'équation Eq.28 du chapitre 1, le lecteur constate que dans ces conditions K_{\perp}^{sup} est une constante indépendante de σ . Concernant les autres textures dont seul le cas $\langle rdm \rangle$ est probable, seules de fortes compressions (> 100 MPa)

pourraient s'avérer pénalisantes pour d_c . Ceci est néanmoins très peu courant en réalité. C'est donc là le très grand avantage du Permalloy. Les tendances sont illustrées sur la figure 4.

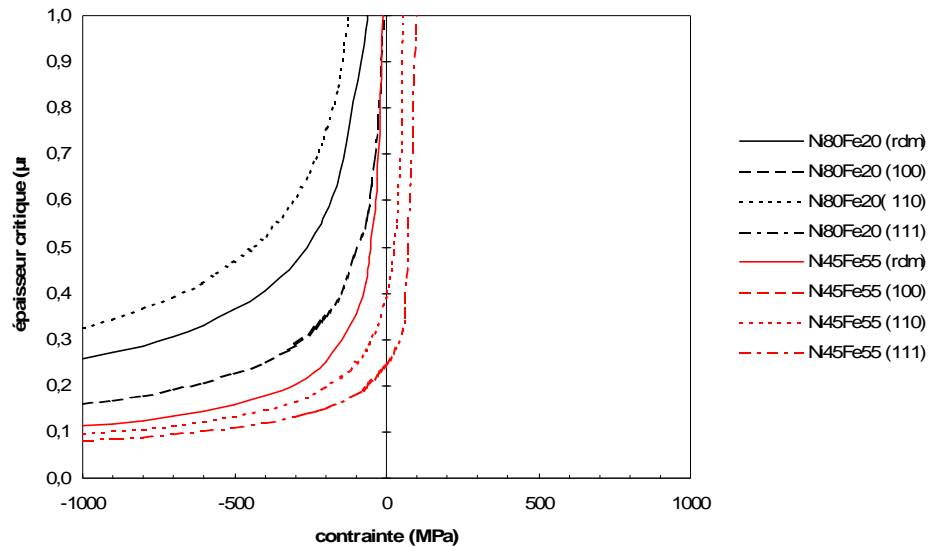


Fig.4 : épaisseur critique théorique d_c en fonction de la contrainte plane isotrope σ pour $Ni_{80}Fe_{20}$ et $Ni_{45}Fe_{55}$ pour différentes textures. Note : les calculs (Eq.25-28) utilisent les constantes K_1 , λ_{100} et λ_{111} de la Fig. 2.

Cela nous amène à nous intéresser un instant à une composition voisine avec l'alliage $Ni_{45}Fe_{55}$, qui a pu être avancé dans la littérature comme une alternative à une valeur de $4\pi M_s$ plus élevée (~ 1.6 T) précisément pour les couches minces. C'est donc un remplaçant possible du Permalloy. Ici, c'est λ_{100} qui s'annule donnant l'avantage théorique à la texture $\langle 100 \rangle$ cette fois, mais qui est très difficilement réalisable dans la pratique. Par contre, ce changement de composition affecte significativement λ_{111} comme on le voit sur la figure 2. La conséquence est immédiate et en particulier avec la texture $\langle 111 \rangle$: d_c , chute à moins de $0.2 \mu m$ pour des valeurs de σ tout à fait raisonnables. C'est là l'explication aux grandes difficultés que nous avons rencontrées en travaillant sur cette composition. C'est l'exemple même d'un transfert très difficile du « massif » aux couches minces (sauf effort particulier sur l'obtention d'une texture $\langle 100 \rangle$). Le Permalloy conserve donc son caractère d'exception à ce niveau.

Il est cependant nécessaire de considérer le problème de l'épaisseur critique plus en détails. La figure 5 est une compilation de résultats expérimentaux issus d'origines diverses (d'après nos travaux). Les valeurs que je reporte ici correspondent aux épaisseurs pour lesquelles des structures en « stripe domains » ont été effectivement observées. Il ne s'agit donc pas exactement de l'épaisseur critique d_c telle que nous l'avons définie (surestimée ici) mais les tendances en sont statistiquement représentatives. Les résultats montrent de façon surprenante une très grande dispersion qui s'étend du micron à quelques centaines de nanomètres. Pourquoi ?

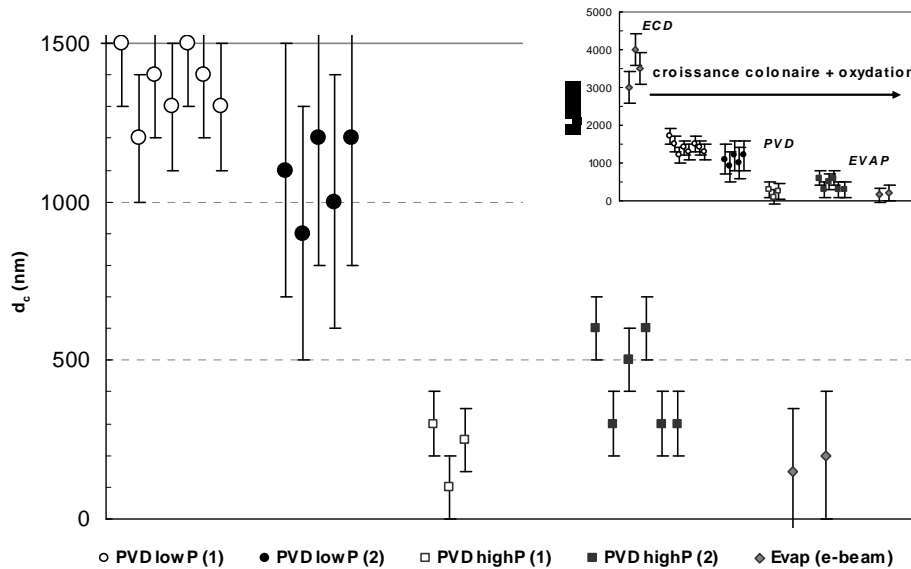


Fig. 5 : Valeurs expérimentales des épaisseurs pour lesquelles des structures en « stripe domains » ont été observées dans des films de Permalloy. Résultats issus de différentes techniques et machines de dépôts (en insert, sont inclus les films élaborés par voie électrochimique ECD).
Note, tous les dépôts sont faits sous champ magnétique

Les séries correspondent à l'utilisation de techniques de croissance différentes : plasma (PVD), évaporation par faisceau d'électrons (e-beam) et électrolyse (ECD). Les nuages de points présentés sur la figure 5 correspondent à des variations (non systématiques) des paramètres dépôts qui influent principalement sur la vitesse de croissance et la température de dépôt. Il s'agit principalement de la puissance (RF ou DC) et de la pression partielle d'Argon pour la PVD. Le vide résiduel rentre également en compte, notamment, pour l'évaporation. Pour la PVD qui est de loin la plus utilisée, j'ai essayé de collecter des résultats très dispersés provenant de différents équipements* mais fonctionnant dans deux gammes de pressions partielles bien spécifiques : 10^{-3} mbar pour « low pressure » contre $\leq 10^{-2}$ mbar pour « high pressure ». * Nordiko, Alcatel, Plassys (low P) - MRC, Endura (high P) - Balzers (Evap)

Je commencerai par commenter les tendances extrêmes qui concernent l'électrolyse (à gauche) et l'évaporation (à droite). Les écarts sur l'épaisseur critique sont très importants avec plus de $1 \mu\text{m}$ pour l'électrolyse et moins de 200 nm pour l'évaporation. Ceci est à mettre en lien direct avec l'analyse théorique de d_c que nous avons faite au chapitre 1, d'après le modèle de Fujiwara. En effet, l'électrolyse du NiFe conduit à une croissance équiaxe de grains qui peuvent atteindre des diamètres très importants ($D \sim 200$ à 400 nm). Il n'y a donc pas de raison à la formation prématurée de « stripe domains ». Ces derniers apparaissent au final lorsque l'épaisseur est suffisamment importante (2 à $3 \mu\text{m}$) et les dimensions latérales des micromotifs favorables à une réduction de l'énergie magnétostatique de surface $2\pi Ms^2$. A l'opposé, l'évaporation conduit à une microstructure quasi-fibreuse (mais dense), c'est-à-dire constituée de grains irréguliers de petits diamètres ($D \sim 20 \text{ nm}$) et très fortement colonnaires, le rapport d/H pouvant facilement atteindre l'unité ici. De plus, le vide résiduel est parmi le plus mauvais ($\sim 10^{-5}$ mbar) conduisant à une oxydation plus rapide qu'avec les autres techniques. D'après le modèle étudié, ce sont les conditions les plus favorables à l'augmentation de K_{\perp}^{sup} . Il est difficile d'être quantitatif car nous ne disposons pas d'analyses précises de la microstructure par microscopie électronique à transmission (TEM) par exemple. Néanmoins, l'estimation de H (et non de D comme on le confond souvent) par diffraction de rayon X (XRD) permet de se positionner correctement à la vue des tendances théoriques qui sont reprises sur la figure 6.

Il en va de même pour les résultats issus de la PVD qui sont intermédiaires au sens de la taille moyenne des cristallites ($D \sim 50$ à 100 nm) et du caractère colonnaire plus ou moins présent selon les conditions expérimentales ($d/H \sim 4$). Le facteur déterminant sur l'épaisseur critique est ici la pression partielle d'Argon. Les résultats convergent sur le fait qu'une pression partielle supérieure ou égale à 10^{-2} mbar est propice à une oxydation partielle du Permalloy que l'on suppose préférentielle aux joints de grains. En général, ceci s'accompagne d'une augmentation de seulement quelques 10^{aines} de % de la résistivité du film. A noter également qu'une mauvaise qualité du vide résiduel ($\geq 10^{-5}$ mbar) contribue aussi à l'oxydation partielle et donc à réduire drastiquement d_c . Les observations expérimentales de la figure 6 sont en ce sens en accord qualitatif avec les tendances prédites au chapitre 1. L'estimation des tendances en adaptant grossièrement les grandeurs du modèle (D , H et C) aux trois cas principaux est réduite ici à une portée illustrative.

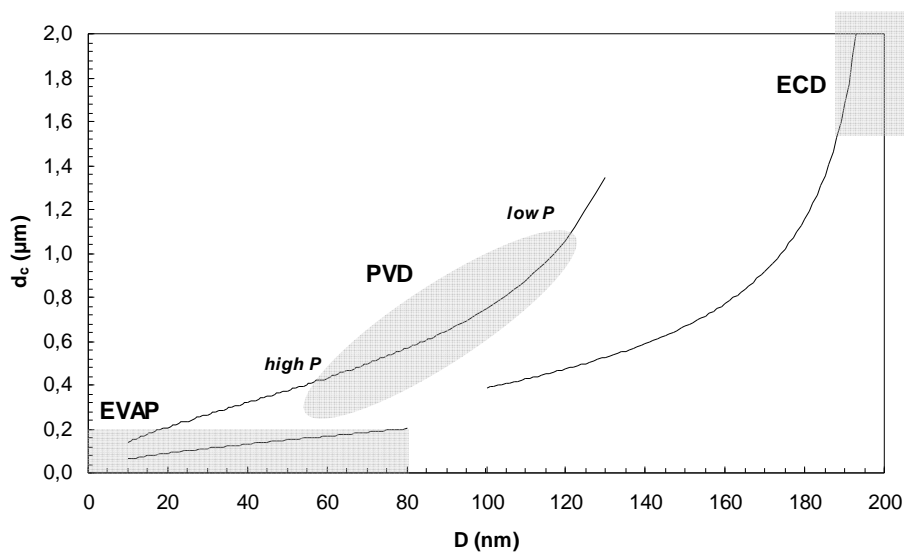


Fig. 6 : Combinaison des tendances théoriques et expérimentales de l'épaisseur critique d_c selon le modèle de Fujiwara pour le Permalloy. Note : les calculs utilisent Eq.29 avec ajustement grossier des grandeurs C , H et D pour chaque cas. Les parties grisées sont représentatives des nuages de points de la figure 4.

Nous faisons donc ici le constat que si le Permalloy contourne les difficultés du premier des *fondamentaux*, il ne satisfait pas pour autant facilement au second. Je montre par là qu'augmenter son épaisseur à des fins utiles typiquement de l'ordre du micron n'est pas sans difficulté. Nous retiendrons que les procédés évitant la croissance colonnaire et l'oxydation partielle sont déterminants en ce sens. Dans la pratique, cela se traduira par le recours à la PVD basse pression ($\leq 10^{-3}$ mbar) avec un vide résiduel poussé ($< 10^{-7}$ mbar) de préférence. Nous allons nous intéresser maintenant aux propriétés dynamiques du Permalloy.

4. Dynamique et intégration

Le Permalloy reste a priori un cas d'école du point de vue de la dynamique, aussi. Son comportement est en principe régi par la seule anisotropie induite K_u . Rappelons, que le Permalloy est peu sujet aux fluctuations spatiales d'aimantation comme en témoigne son facteur de structure au sens d'Hoffmann qui fait office de la valeur référence pour les films ferromagnétique doux : $S \leq 10^{-2}$ erg.cm⁻². La raison tient à la valeur déjà modérée de l'anisotropie magnétocristalline K_1 qu'un couplage d'échange ferromagnétique intergranulaire très fort associé à une structure polycristalline fine et homogène (« single phase ») suffit à moyennner à zéro (ceci bien sûr dans la limite de l'oxydation des joints de grains).

Un spectre expérimental typique de la perméabilité dynamique en champ nul d'une couche d'épaisseur 300 nm est présenté sur la figure 6. Le modèle *macrospin* (LLG) est confronté aux mesures. L'accord est ici excellent sur toute la gamme de fréquence et met en exergue le très faible coefficient d'amortissement α à la résonance de l'ordre de 10^{-3} . Ceci est à rapprocher du facteur de structure S et fait également office de référence pour la dynamique. Sans surprise, on constate que la fréquence de résonance ferromagnétique F_r vaut 660 MHz conformément à l'équation Eq. 39 du chapitre 1. On reste ici encore devant un cas d'école.

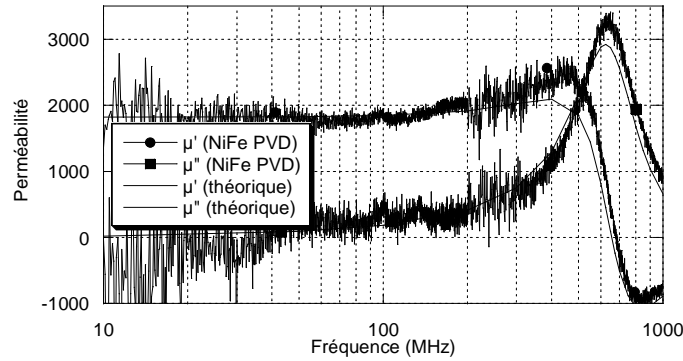


Fig. 6 : Spectres en fréquence de la perméabilité d'une monocouche de Permalloy d'épaisseur de 0,3 μm non structurée (4mmx10 mm). Note : courbes théoriques macrospin en traits fins (Thèse R. Hida)

Intéressons-nous immédiatement au comportement de la même de couche mais en micromotif cette fois. Ici, c'est la dimension W dans la direction de l'anisotropie K_u que nous avons réduite. On est donc dans la logique des facteurs de forme $W/L \ll 1$ que nous avons décrits au chapitre 1. Le spectre expérimental est présenté sur la figure 7.

Premier constat : la différence de comportement est saisissante. Elle se manifeste par une coupure parfaitement visible autour de 30 MHz qui n'est pas présente dans le cas précédent. Au-delà, les comportements se raccordent jusqu'à la fréquence de résonance ferromagnétique qui demeure inchangée avec une nuance toutefois concernant l'amplitude de la partie réelle. On est ici devant l'illustration parfaite de la résonance des domaines de fermeture, ce que nous allons démontrer. Mais j'invite le lecteur à mesurer d'abord la difficulté à rester dans le cadre du troisième des *fondamentaux* au sens du modèle *macro spin* ici pour un simple micromotif de Permalloy de largeur 100 μm .

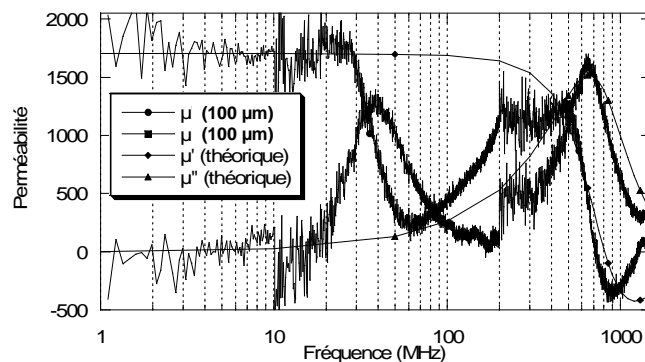


Fig. 7 : Spectres en fréquence de la perméabilité d'une microstructure de Permalloy d'épaisseur de 0,3 μm , de largeur $W=200 \mu\text{m}$ ($// K_u$) et longueur 1 mm. Note : courbes théoriques macrospin entrants fins. (Thèse R. Hida)

L'imagerie Kerr révèle la structure en domaine décrite au chapitre 1 comme montré sur la figure 8. La dimension caractéristique D de cette structure est parfaitement prédite par l'équation Eq. 42 comme reporté dans le tableau 1. L'application numérique de la formule

approchée de la résonance F_0 des parois à 90° d'après l'équation Eq. 44 est également en parfait accord avec la valeur expérimentale (1^{er} maximum sur la partie imaginaire de μ) comme on peut le constater dans le tableau 1. Pour terminer ces observations, remarquons que la partie réelle de la perméabilité à 200 MHz, qui reflète uniquement la rotation cohérente de l'aimantation, chute de 35 % par rapport à μ_{dc} . Ce chiffre correspond précisément à la proportion de la surface résiduelle occupée par les domaines de fermeture qui ne contribuent plus à μ et que l'on évalue à $\sim 33\%$ sur la figure 8.

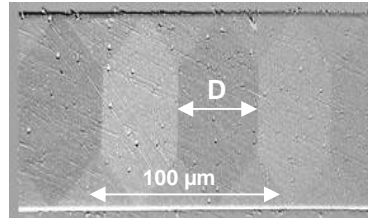


Fig. 8 : observation au microscope à effet Kerr de la structure en domaines d'une microstructure de Permalloy de largeur $100\ \mu\text{m}$ ($//\ \text{Ku}$) et de longueur $1\ \text{mm}$. (Thèse R. Hida)

	D (μm)	F_0 (MHz)
expérimental	45	30
théorique	49	35

Tab.1 : valeurs expérimentales et théoriques de la largeur des domaines principaux D et de la fréquence de résonance F_0 des domaines de fermeture. (Thèse R. Hida)

Les modèles présentés au chapitre 1 dans le cadre du troisième des *fondamentaux* permettent de généraliser ce comportement avec domaines de fermeture à d'autres géométries ($50\ \mu\text{m} \leq W \leq 500\ \mu\text{m}$) et également à d'autres compositions. Cela a été largement documenté du point de vue expérimental dans le travail de thèse de R. Hida [3] auquel je renverrai le lecteur. Mais ici, dans un but de bénéficier pleinement de l'intégralité du spectre prédit par le modèle *macro spin* et de tout le potentiel en termes d'amplitude de la perméabilité, nous allons nous focaliser sur l'élimination des domaines de fermeture.

5. Principe de l'Edge Curling Wall (ECW)

Je vais repartir d'un article important de Slonczewski [2] qui fait suite aux constats expérimentaux de Lazzari et Melnick [1] selon lesquels le bruit de Barkhausen dans les têtes inductives est plus faible à la lecture lorsque les pôles sont laminés. Je rappelle au préalable ce que sont les laminations. Il s'agit au départ simplement d'intercaler des couches de diélectriques entre les couches de Permalloy de manière à se prémunir de l'effet de peau au regard de l'augmentation très rapide des fréquences de fonctionnement des têtes inductives qui étaient alors l'état de l'art du *data storage*. Ceci s'avère rapidement probant envers la fréquence mais de manière inattendue montrent également une réduction très significative du bruit à la lecture. La cause de ce bruit (*pop corn noise*) est connue et liée au décrochement intempestif des parois magnétiques non parfaitement parallèles à la direction d'anisotropie induite dont les domaines de fermeture. La disparition de ce bruit avec les laminations, qui

n'est constaté que pour des cas très particuliers, est corrélée avec l'imagerie magnétique qui indique clairement une absence de domaines de fermeture. C'est ici que Slonczewski établit un modèle énergétique très complet rendant compte d'autres possibilités de fermeture du flux magnétique dans la direction de l'anisotropie induite avec les laminations : c'est la configuration en *Edge Curling Wall* (ou *ECW*). J'en rappelle maintenant les grandes lignes.

L'idée repose que dans une bicouche (plus tard étendu à une multicouche) ferromagnétique séparé par un espaceur amagnétique la fermeture de flux aux extrémités d'un micromotif puisse se faire à travers la formation d'une paroi de bord (*ECW*) de largeur $\pi\Delta/2$ où l'aimantation se retourne jusqu'à être perpendiculaire au plan des couches. Les couches ferromagnétiques adoptent alors une configuration antiparallèle très stable. Slonczewski a résolu le problème aux énergies d'un tel système et a établi les conditions de stabilité. Nous allons les comparer à celles de la configuration classique avec domaines de fermeture.

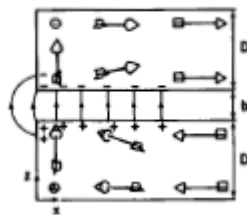


Fig. 9 : Schéma de principe de la fermeture de flux d'une bicouche ferromagnétique d'épaisseur D séparé par une couche amagnétique d avec formation d'une paroi de bord verticale dit « edge curling wall » d'après [2]

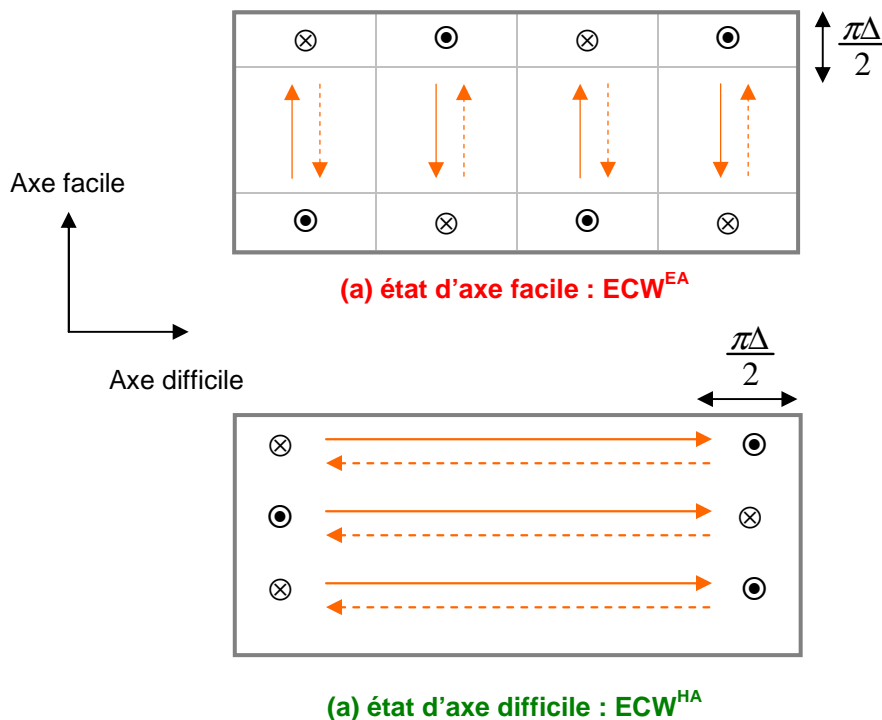


Fig. 10 : Représentations des structures en domaines théoriques avec parois *ECW* pour une bicouche ferromagnétique séparée par un espaceur amagnétique : (a) état d'axe facile (ECW^{EA}) et (b) état d'axe difficile (ECW^{HA}). Note : à rapprocher de Fig.12 Chap.1 pour la configuration avec domaines de fermeture (DF).

Les énergies (par unité de longueur) respectives s'écrivent sous la forme

$$E_{ECW}^{EA} = \pi KD\Delta \quad \text{Eq. 50}$$

$$E_{ECW} = KDW \quad \text{Eq. 51}$$

et la largeur d'une paroi ECW à l'équilibre est donnée par

$$\frac{\pi}{2} \Delta = M_s \sqrt{\frac{\pi b D}{K}} \quad \text{Eq. 52}$$

La frontière entre ces deux états est déterminée par $W = \pi\Delta$.

L'énergie (par unité de longueur) pour la configuration avec domaines de fermeture vue au chapitre 1 est également rappelée ici

$$E_{DF}^{EA} = D\sqrt{(2K\sigma_B W)} \quad \text{Eq. 53}$$

$$\text{et } \sigma_B = 21,43\left(\frac{A}{D}\right) + 0,581KD \quad \text{Eq. 54}$$

avec D : l'épaisseur de matériau magnétique, d : l'épaisseur de l'espaceur amagnétique, K_u : la constante d'anisotropie induite, W : la largeur du motif dans la direction de K_u , A : la constante d'échange et σ_B : l'énergie d'une paroi de Bloch.

Pour déterminer la configuration d'équilibre du système, il suffit de comparer les énergies des trois structures. La structure la plus stable sera celle qui aura la plus faible énergie. A titre d'exemple, on considère un motif de largeur $W = 8 \mu\text{m}$ constitué d'une bicouche de Permalloy d'épaisseur D variable et séparée par un espaceur d'épaisseur fixée à $d = 30 \text{ nm}$ ici.

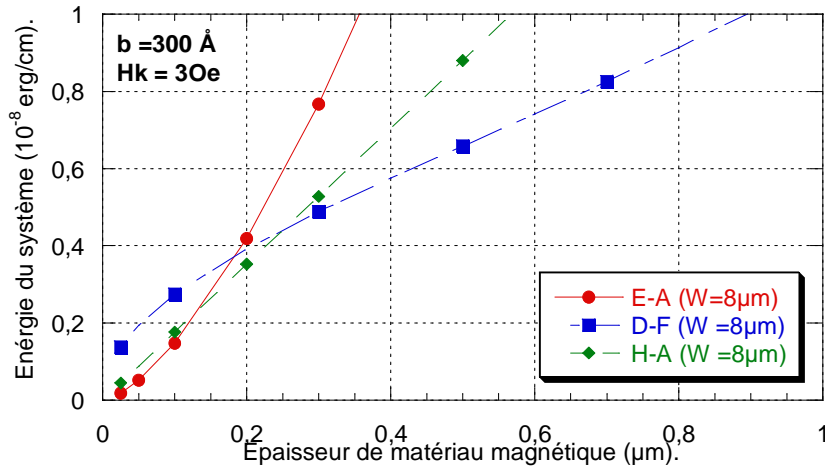


Fig. 11 : évolution des énergies pour une bicouche de Permalloy de $8 \mu\text{m}$ de largeur en fonction de l'épaisseur de matériau magnétique et pour une épaisseur d'espaceur amagnétique fixée à 30 nm . (Thèse R. Hida)

Cette figure appelle plusieurs commentaires. D'abord, on constate que pour une épaisseur de couche magnétique D relativement importante (~ 0.5 à $1 \mu\text{m}$), c'est la structure classique avec domaines de fermeture qui persiste. Mais, la réduction de D conduit en dessous de $0.2 \mu\text{m}$ à une compétition rapide entre les structures. L'Edge Curling Wall devient alors possible. En réduisant encore D sous $0.1 \mu\text{m}$, c'est l'état d'axe facile ECW qui est favorisé. Mais, on voit que les énergies E_{ECW}^{EA} et E_{ECW}^{EA} sont proches, ce qui n'est pas un gage de stabilité. Il s'avèrerait nécessaire dans le cas présent de réduire l'épaisseur de l'espaceur d pour

augmenter le couplage magnétostatique dans la zone de curling pour que la configuration ECW^{EA} soit définitivement stable. Ceci est illustré sur la figure 12 où l'on voit clairement que la largeur de la paroi ECW diminue si l'espaceur b est plus fin. Enfin, une dernière remarque pour indiquer qu'une constante d'anisotropie induite K_u plus élevée que celle du Permalloy retardera le basculement de l'aimantation en état ECW^{HA} d'après l'équation 52.

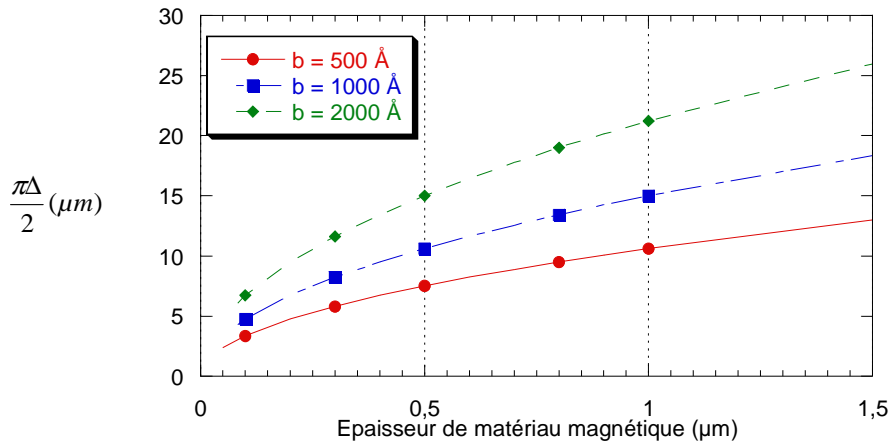


Fig. 12: évolution de l'épaisseur d'une paroi ECW en fonction de l'épaisseur de matériau magnétique pour une bicouche de Permalloy séparée par différentes épaisseurs d'espaceur (b). (Thèse R. Hida)

Le modèle est généralisable et paramétrable ce qui lui confère une potentialité prédictive. Ainsi, pour un micromotif de largeur W donnée, on peut établir un diagramme de phase en fonction des épaisseurs respectives des couches magnétiques D et d'espaceurs amagnétiques d . Un exemple est montré sur la figure 13 où d est fixé à 50 nm dont les points ont été validés expérimentalement (exemple sur la figure 4). Ici, l'espaceur est constitué d'une couche de silice (PVD).

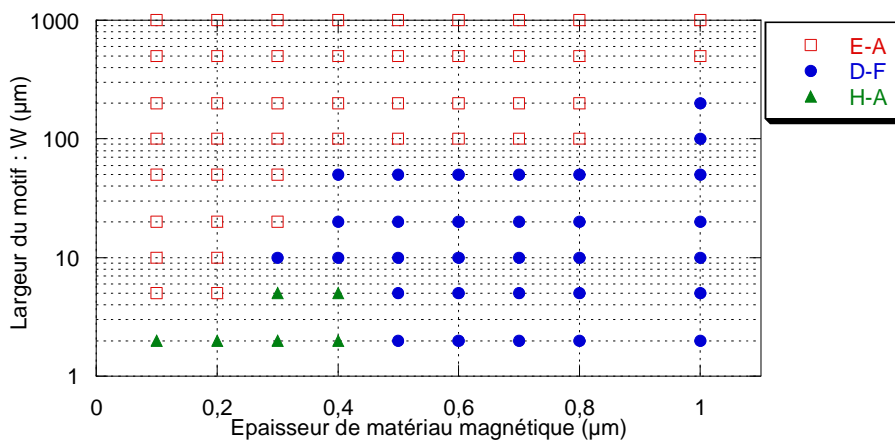


Fig. 13: diagramme de phase des états de fermeture de flux pour une bicouche de Permalloy en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique et de largeur W des motifs. L'épaisseur de l'espaceur d est fixée à 50 nm (Thèse R. Hida)

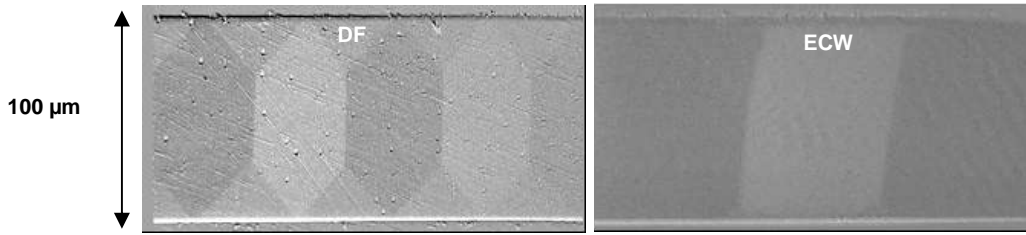


Fig. 14 : images Kerr de la structure en domaines d'une microstructure de Permalloy de largeur $100 \mu\text{m}$ ($// Ku$) et de longueur 1 mm constituée d'une bicouche de Permalloy $2 \times 200 \text{ nm}$ séparée par un espaceur (ici SiO_2) d'épaisseur 50 nm (à droite) et comparaison avec une monocouche d'épaisseur équivalent (à gauche).

La figure 14 est explicite au sens de l'éradication (presque complète ici) des domaines de fermeture tout en conservant la configuration souhaitée de l'aimantation. C'est l'illustration même de la solution (générique) que j'inscrirai dans le cadre du troisième des *fondamentaux* à travers le concept de lamination avec ECW sous réserve que le spectre de perméabilité correspondant soit maintenant en adéquation avec le modèle *macro spin*.

C'est exactement ce que nous voyons sur la figure 15 qui est à rapprochée de la figure 7. La coupure spécifique à 35 MHz due aux domaines de fermeture a disparu et le spectre de perméabilité est maintenant complet en amplitude et fréquence. L'accord avec le modèle *macrospin* de la perméabilité est maintenant restauré.

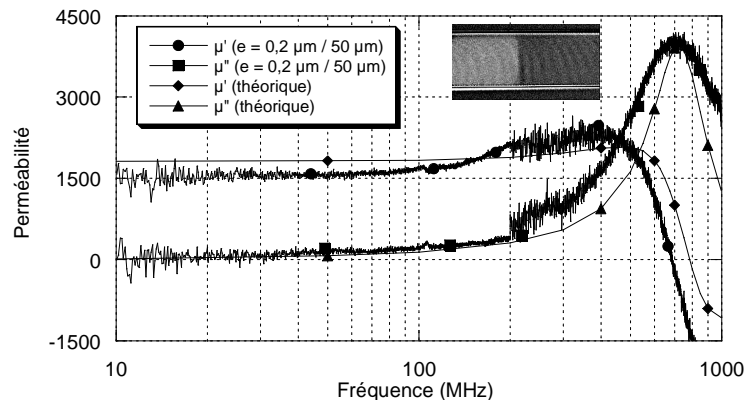


Fig. 15 : spectres en fréquence de la perméabilité d'une microstructure de Permalloy d'épaisseur de $0,3 \mu\text{m}$, de largeur $W = 50 \mu\text{m}$ ($// Ku$) et de longueur 1 mm . Note : courbes théoriques *macrospin* en traits fins et image de la structure en domaines en insert. (Thèse R. Hida)

La solution au troisième des *fondamentaux* est donc le recours systématique au principe d'Edge Curling Wall pour préserver à hautes fréquences les microstructures de la formation de domaines dont les parois ne sont pas perpendiculaires à la direction d'excitation. De plus, cette solution est parfaitement compatible avec la lamination des films ferromagnétiques par un diélectrique qui demeure indispensable dans la grande majorité des cas au regard de l'effet de peau. Je propose maintenant au lecteur d'en montrer la portée à travers plusieurs exemples de réalisation technologique utilisant ici des microcircuits magnétiques en Permalloy qui s'avèrent très performants pour la partie basse du spectre hyperfréquence (typiquement, jusqu'à 100 MHz).

6. Réalisations technologiques

Le concept *ECW* trouve sa pleine justification pour les microdispositifs qui véhiculent le flux magnétique dynamiquement selon la longueur principale du circuit magnétique. C'est le cas théorique précédent où l'axe facile est transverse au barreau. Les figures suivantes illustrent différentes applications dont les performances ont été augmentées grâce à l'*ECW*. Je reviens sur l'idée que ce principe d'optimisation est général et déclinable d'un « barreau » unitaire à un assemblage de « barreaux » pour la réalisation d'un circuit semi-fermé (avec entrefer) ou totalement fermé. C'est précisément sur la performance des microcircuits magnétiques fermés que nos travaux se sont avérés déterminants et occupent encore l'avant scène de l'état de l'art. Cinq brevets déposés entre 2005-2006 en témoignent [5, 7-11].

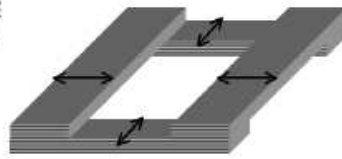
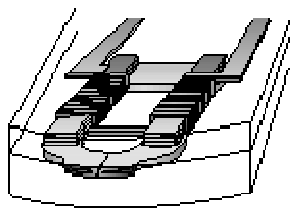
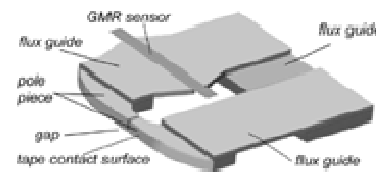


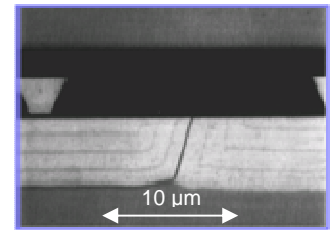
Fig. 15 : principe du circuit magnétique fermé à quatre « barreaux » avec fermeture de flux en Edge Curling Wall. Note : les flèches indiquent les directions de l'axe facile de chaque branche.



Tête inductive planaire

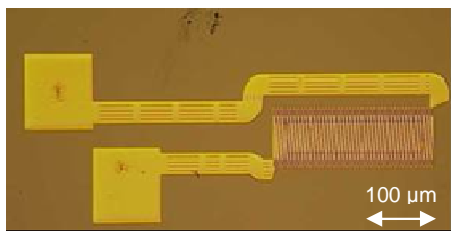


Tête magnétorésistive planaire

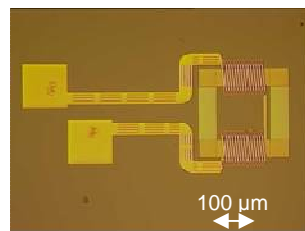


Vue en coupe des pôles laminés

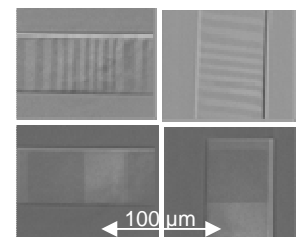
Fig. 16 : exemples d'application du principe ECW aux têtes de lecture planaires pour l'enregistrement hélicoïdal sur bandes développées conjointement avec la société Alditech avec circuits en Permalloy (ECD) laminé [3,4]



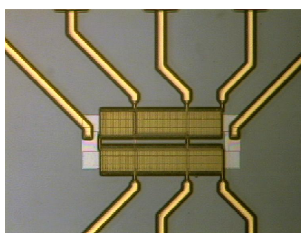
Topologie générique solénoïdale [3]



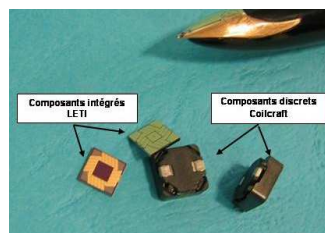
Topologie générique toroïdale [3]



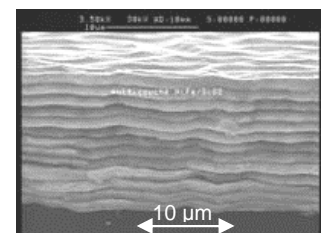
Avec DF (en haut) et ECW (en bas)



Capteur µfluxgate [5, 6]



Inductance pour convertisseur DC-DC [7, 12, 13]



Vue en coupe d'un noyau épais [13]

Fig. 17 : autres exemples de dispositifs inductifs optimisés via ECW avec noyaux en Permalloy (PVD) laminé

Du point de vue technologique, nous avons acquis une grande maîtrise du principe de l'*ECW* sur la base de multicouches alternant Permalloy et Silice. L'originalité est d'avoir couvert une gamme d'épaisseur très large avec des couches de Permalloy de 30 nm à 3 μm et d'avoir réalisé des noyaux laminés avec *ECW* jusqu'à 20 μm d'épaisseur cumulée. On peut résumer ces travaux par deux constats communs quant aux gains de performance globaux observés sur chaque microdispositif. L'amélioration est en moyenne **de 20 à 30 %** par rapport aux cas sans *ECW* grâce à une perméabilité effective très proche des valeurs théoriques *macrospin* (moins de 10 % d'écart). L'autre constat porte sur l'augmentation très significative des fréquences de travail que l'on peut pousser aisément jusqu'à 100 MHz toujours aux échelles des micromotifs. Bien sûr, il n'est pas possible d'aller au-delà en raison de la fréquence de résonance ferromagnétique du Permalloy limitée à 660 MHz et de l'augmentation rapide de la partie imaginaire. Ces améliorations sont notables au regard de l'état de l'art (limité au mieux à qq. MHz) et ont hissé Permalloy (en version laminée *ECW*) dans le bas du spectre des hyperfréquences pour les applications intégrées.

Ceci va conduire à un résultat d'importance concernant les inductances pour la conversion d'énergie qui se heurtent à un problème d'intégration. Je terminerai donc sur cette application en renvoyant le lecteur vers le manuscrit de thèse de B. Orlando qui décrit l'intégralité de ce travail qui a été effectué en collaboration avec la société STMicroelectronics. Partons du constat général que les circuits de gestion de puissance qui utilisent principalement des convertisseurs de tension DC-DC restent les seuls composants non intégrés à ce jour y compris dans les téléphones portables. Si des efforts considérables sont faits depuis plusieurs dizaines d'années, l'intégration des inductances de puissance est un échec car le rapport spécifique L/R_{DC} ne peut être réalisé. Typiquement, on cherche des inductances d'une valeur de 1 à 5 μH pour un R_{DC} de 50 m Ω . Seuls les composants discrets y répondent. La figure 19 offre une vue d'ensemble de l'état de l'art établie en 2006. Elle montre en quoi il est difficile de répondre à ce rapport malgré les avancées des technologies microsystèmes, notamment, dans l'intégration de couches conductrices épaisses ($\geq 10 \mu\text{m}$).

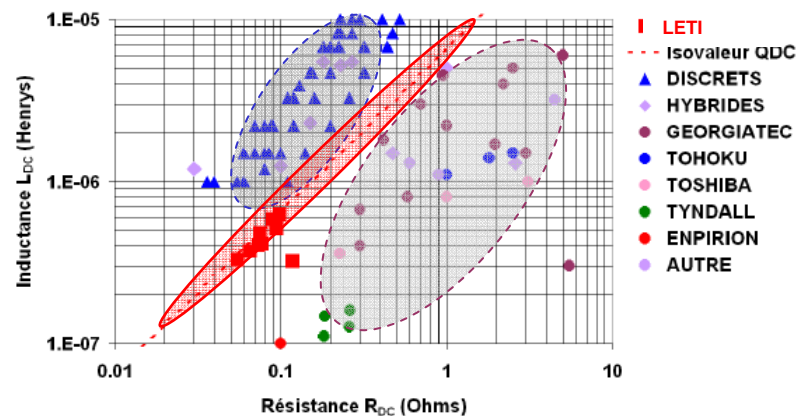


Fig. 18 : état de l'art en 2006 des inductances pour la conversion d'énergie vs. le rapport spécifique L/R_{dc} . (Thèse B. Orlando)

Grâce à la performance des microcircuits magnétiques décrits plus haut, le travail de B. Orlando a permis d'optimiser la densité d'inductance linéique pour les principales selfs de l'état de l'art. La figure 19 confrontent les résultats de calculs analytiques et numériques pour différentes topologies d'inductances (spirales, toroïdales, méandres, lignes encapsulées ...).

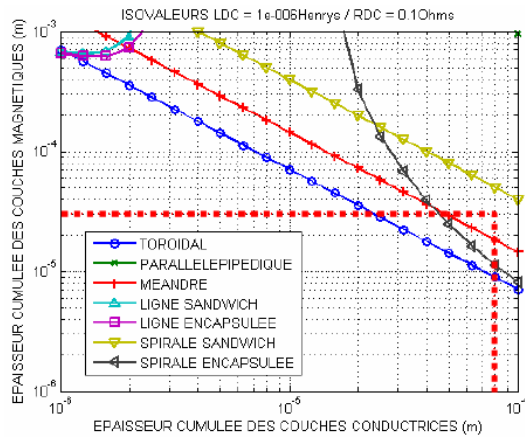


Fig. 19 : exemple d'un diagramme de phase en fonction des épaisseurs des couches conductrices et magnétiques pour un rapport spécifique $L=1\mu\text{H} / R_{DC} = 100\text{m}\Omega$ pour différentes topologies d'inductance. (Thèse B. Orlando)

En pratique, cela permet de minimiser la longueur de fil (ou le nombre de tours) pour une valeur d'inductance donnée. Les rapports records de $0.3 \mu\text{H} / 50 \text{m}\Omega$ et de $0.7 \mu\text{H} / 100 \text{m}\Omega$ ont ainsi été établis par nos soins. Ils restent inégalés aujourd'hui pour des selfs intégrées. Mais la fabrication de ce type d'inductance qui cumule des épaisseurs hors normes tant pour les conducteurs (de 10 à 30 μm) que pour le noyau magnétique (de 10 à 20 μm) s'avèrera peu compatible avec les contraintes d'une production industrielle.

C'est de l'exceptionnelle tenue en fréquence de ces selfs ($\geq 30 \text{MHz}$ avec ECD contre $\leq 2 \text{MHz}$ pour l'état de l'art) que viendra une solution possible. Elle sera en rupture avec l'idée classique d'une gestion de l'énergie en un seul point du circuit, ce qui impose un niveau de puissance élevé donc des selfs de fortes valeurs et des fréquences de conversion lentes. L'idée consiste à distribuer la puissance en des points multiples et d'effectuer les conversions à plus haute fréquence ; ce que permettent nos selfs. On converge alors sur des spécifications relâchées, par exemples : 100 nH à 10 MHz, 20 nH à 50 MHz et 10 nH à 100 MHz, avec $R_{dc} \leq 50 \text{m}\Omega$. Les modèles développés par B. Orlando montrent que les microcircuits magnétiques toroïdaux restent les plus avantageux. Leur épaisseur se réduit considérablement (1 à 2 μm) aussi. Ceci facilite l'optimisation au regard de la fréquence (possible jusqu'à 200 MHz) en s'affranchissant des limites imposées par l'effet de peau avec des noyaux de Permalloy plus finement laminés. Cela rend beaucoup plus crédible aussi la possibilité de fabrication en série car les temps de cycle réduits et la fiabilité améliorée. La valorisation industrielle auprès de grands acteurs (STM, NXP, Epcos) reste en cours mais se heurte à l'absence de véritable *fondeur* orienté microsystèmes en Europe. A la suite de ce travail, de nombreuses variantes ont été protégées par des brevets (Fig. 20).

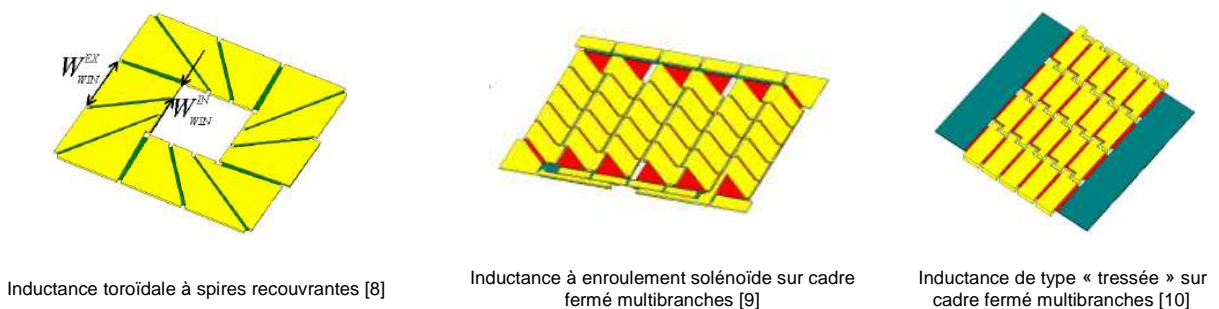


Fig. 20 : variantes optimisées de l'inductance intégrée pour la conversion d'énergie basées [13]

Ce chapitre aurait pu se terminer ici sur le constat que le Permalloy, candidat par excellence au ferromagnétisme doux à basse fréquence, peut l'être également du moins dans la première partie du spectre des hyper fréquences (≤ 1 GHz). Mais cela est soumis à des contraintes qui découlent des *fondamentaux* que j'ai rappelés. Dans la pratique, le Permalloy ne peut être utilisé que sous la forme de structures laminées par un diélectrique et couplées magnétostatiquement par les bords (*ECW*). Cependant, il reste pénalisé pour les plus hautes fréquences par sa faible résistivité ($\rho = 20 \mu\Omega.cm$) au regard de l'effet de peau et par sa fréquence de résonance ($F_r = 660$ MHz) trop basse pour aborder les applications GSM et UMTS, par exemple. Nous devons donc chercher une alternative au Permalloy. C'est ce que je vais décrire brièvement ici.

7. Alternative au Permalloy

Si l'on suit chronologiquement l'état de l'art, l'alternative au Permalloy reste d'abord cantonnée à celui des matériaux « massifs ». C'est donc vers les alliages amorphes que la communauté scientifique se tournera. Si l'on revient sur les idées d'Herzer, un tel matériau en couche mince devrait cumuler : caractère doux et épaisseur critique illimitée, doublée d'une faible conduction électrique, du fait l'absence de réseau cristallin. C'est le succès des verres de spin ultra doux en FeSiB et CoFeSiB (ou « Metglas ») qui imposera la direction à suivre [14]. Le principe repose sur l'existence d'un eutectique profond dans leur diagramme de phase qui autorise la surfusion naturelle du composé. Mais le passage aux couches minces ne sera jamais avéré. D'une part, il y a une trop grande volatilité du bore en évaporation ou pulvérisation cathodique ne permettant pas de conserver les compositions adéquates. D'autre part, il est très difficile de reproduire les conditions de vitrification des méthodes de solidification rapide (vitesse du front de solidification élevée $> 2 m.s^{-1}$) avec les techniques de dépôt sous vide, du fait de cinétiques différentes, notamment, en présence d'un plasma. Au final, les candidats potentiels sont peu nombreux à cause de températures de Curie trop faibles ou d'un caractère exclusivement paramagnétique. C'est le cas des alliages de fer ou de la grande majorité des alliages de cobalt avec métaux de transition comme Zr, Hf, Ta, Nb [15]. Finalement, l'alternative viendra d'un seul composé : le CoZr. Parmi les compositions les plus abouties on trouvera : $Co_{91.5}Zr_4Ta_{4.5}$ [16], $Co_{85}Zr_3Nb_{12}$ [17] et $Co_{88}Zr_4Nb_8$ [18].

Je vais donc m'arrêter quelques lignes sur ce dernier. La première série de résultats de la figure 20 concerne des dépôts effectués par PVD magnétron « classique » (réalisés à PHS-MEMS sur Nordiko) et la seconde des dépôts par la méthode dite « au défilé » mise au point par le CEA Le Ripault. Ces derniers sont considérés comme l'état de l'art dans le domaine de la furtivité pour les absorbants radars hyperfréquences sur substrats souples, ce que nous avons essayé de transférer au silicium dans un travail conjoint.

A la lecture des cycles d'hystérésis, on se rend immédiatement compte qu'il s'agit de couches ultra douces ($H_c^{EA} \sim 0.05$ Oe), comme prédit par Herzer. Elles présentent naturellement une anisotropie uniaxiale induite, beaucoup plus prononcée dans le cas du dépôt au « défilé ». Les spectres de perméabilité confirment le bon comportement dynamique qui en résulte et qui répond au modèle théorique *macrospin* (en rouge sur spectres de la Fig. 20). On note cependant des anomalies après la résonance ferromagnétique F_r .

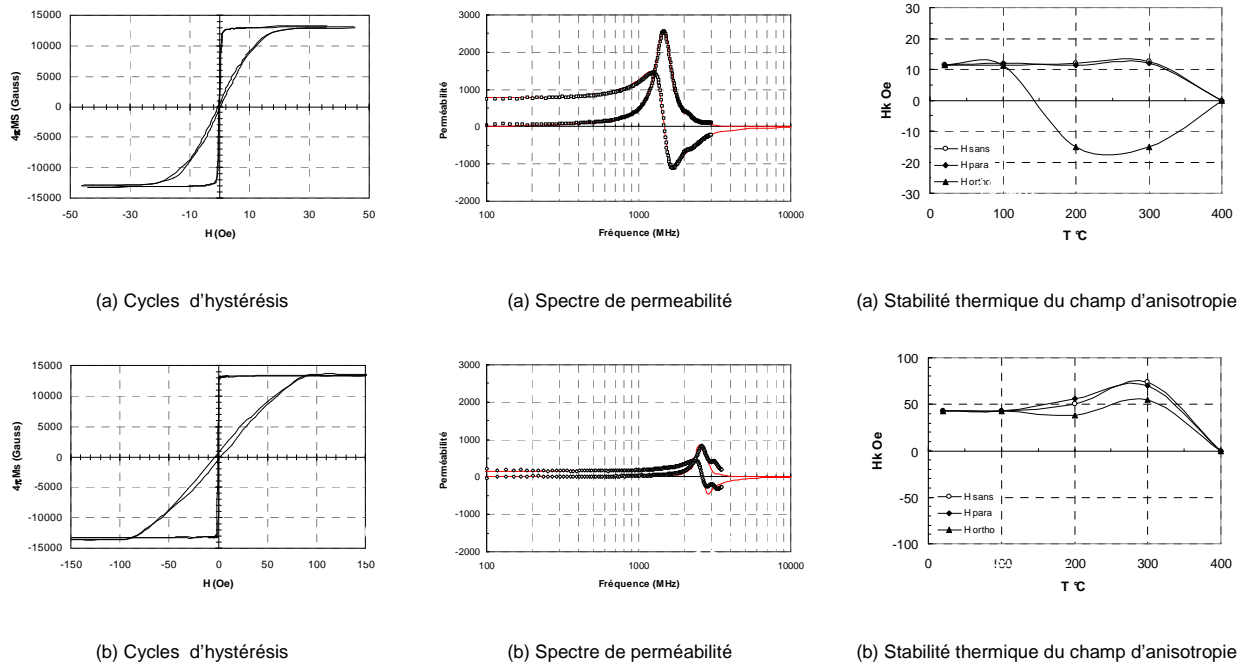


Fig. 20 : principales caractéristiques du CoZrNb amorphe en couches mince élaborés par PVD magnétron : (a) procédé « conventionnel » (0.25 μm d'épaisseur) et (b) méthode « au défilé » (0.12 μm d'épaisseur) propriété du CEA Le Ripault

A ce stade les avantages par rapport au Permalloy sont incontestables avec, notamment, $\rho \sim 100 \mu\Omega.\text{cm}$ et $F_r = 1.5$ et 2.5 GHz, respectivement, pour le dépôt conventionnel et pour le dépôt au « défilé ». On note que les constantes de Gilbert restent néanmoins similaires à celles du Permalloy bien que le caractère quasi-statique s'avère beaucoup plus doux. Le CoZrNb justifie donc a priori sa place intermédiaire sur notre feuille de route (Fig. 21).

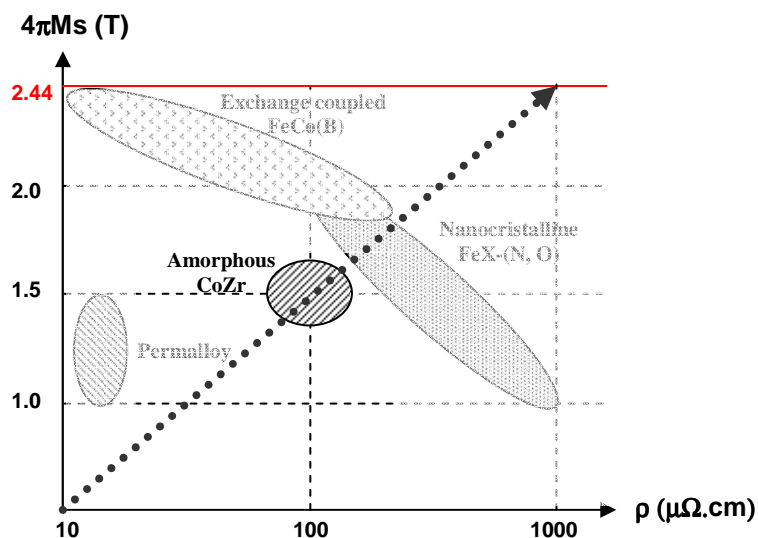


Fig.21 : feuille de route pour les couches ferromagnétiques douces pour la RF, d'après nos travaux

Cependant, et ce malgré le caractère amorphe, ces films souffrent de deux handicaps majeurs. En premier lieu, l'épaisseur critique d_c , contre toute attente, est très basse (0.5 μm pour le dépôt conventionnel et 0.2 μm pour le dépôt au « défilé ») alors que des valeurs beaucoup plus importantes peuvent être accessibles [16]. Cette très grande disparité n'est pas comprise

et ne peut pas se référer aux modèles relatifs à d_c déjà décrits. En effet, ce sont des films aux constantes de magnétostriction nulle par définition et sans effet magnétostatique possible au niveau des grains puisqu'ils en sont dépourvus. D'autres types de défauts sont à considérer, ce qui est fondé sur l'idée de probables fluctuations périodiques de la densité à longue distance, mais les preuves expérimentales manquent.

En second lieu, l'anisotropie uniaxiale induite s'avère mal définie (faible caractère biaxial perceptible) et surtout très peu stable au regard de contraintes thermomagnétiques. Des modifications sont observées dès 100°C (Fig. 20, colonne de droite) et deviennent très significatives dès le lors qu'un champ magnétique statique (même faible) est appliqué hors direction d'anisotropie initiale. A noter que seule la version déposée par la méthode du « défilé » ne subit pas d'inversion d'axes après recuit sous champ magnétique transverse, ce qui demeure inexpliqué.

Cette limitation au regard de la température va s'avérer rédhibitoire pour les applications. Nous n'arriverons à stabiliser une structure laminée équivalente à celle du Permalloy en intercalant un diélectrique fin dont les techniques de dépôt ne sont pas compatibles avec une telle contrainte (*pour information : les meilleurs compromis que nous ayons établis avec la silice sont : 130°C par PVD RF-diode et 220°C par PECVD*). De plus, toute perturbation magnétique, dont les champs de fuite radiaux des magnétrons par exemple, vient inmanquablement dégrader l'anisotropie induite initialement. Dans le cas particulier du dépôt au « défilé », qui peut remédier à certaines de ces limitations, c'est la technique de dépôt (chambre monocathode spécifique) qui ne permet pas la réalisation de structures laminées. En somme, on reste cantonné à l'utilisation de monocouches plutôt fines et gouvernées par la présence des domaines de fermeture. Nous sommes allés néanmoins jusqu'à l'intégration dans une filière expérimentale d'inductance RF en technologie compatible Above IC's en collaboration une nouvelle fois avec STMicroelectronics. La figure 23 résume les principaux résultats extraits de [19].

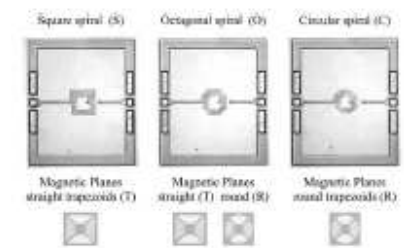


Fig. 1. Optical images of two-port coplanar 3.5-turn inductors with square (S), octagonal (O), and circular (C) spirals and corresponding combination of magnetic planes with "straight" (T) or "round" (R) trapezoid types.

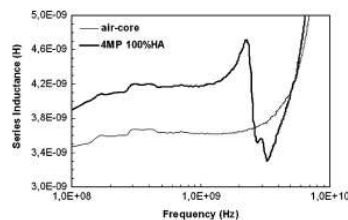


Fig. 2. Frequency-dependence of the series inductance for a 3.5-turn square spiral inductors with four magnetic planes (MP) with 100%-HA-excitation and comparison with the corresponding air-core inductor (deembedded data).

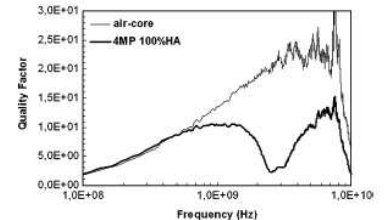


Fig. 3. Frequency-dependence of the quality factor for a 3.5-turn square spiral inductors with four magnetic planes (MP) with 100%-HA-excitation and comparison with the corresponding air-core inductor (deembedded data).

Fig. 23 : principales caractéristiques des inductances spirales avec 4 écrans magnétiques supérieurs en CoZrNb ($0.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur) réalisé par la méthode au « défilé » du CEA Le Ripault [19]. Note : pour une orientation correcte des axes faciles des 4 écrans, 2 dépôts sont nécessaires avec une rotation à 90° .

Cette toute première réalisation pour les hyperfréquences a d'abord été prometteuse au sens d'avoir validé la conception de selfs RF à écrans ferromagnétiques. C'est une première. Cependant, les tests électriques ont montré que l'on s'écarte aussi de 30 à 40 % des prévisions fondées sur le modèle *macrospin* de la perméabilité de la couche originale. La principale raison tient à la dégradation des propriétés magnétiques de la couche au regard du bilan thermique de fabrication qui reste trop élevé (*bien qu'aucun procédé ne dépasse 150°C*). Le gain observé sur les selfs de référence (air-core) reste modéré $\sim 10\%$ à cause principalement du manque d'épaisseur du film ($0.1 \mu\text{m}$ ici). Les facteurs de qualité à 1 GHz sont acceptables mais pénalisés par une dégradation trop rapide de la partie imaginaire de la perméabilité. Ceci

s'explique par la réduction de F_r , sous l'effet du cumul thermique, qui passe de 2.8 GHz à 1.8 GHz (facteur de forme inclus). Enfin, la résonance des domaines de fermeture perceptible autour de 100 MHz reste pénalisante même si les conditions d'excitation sont ici plus favorables avec la géométrie spécifique des écrans, ce qui plus tard sera également confirmé par d'autres [20]. Au terme de cette étude, nous avons conclu que les couches amorphes de CoZrNb(Ta) restent une référence en termes de performances pures pour les hyperfréquences mais la métastabilité intrinsèque dont elles souffrent les relègue au second plan dès que l'on aborde les problèmes concrets de l'intégration technologique. On est ici dans l'illustration des conséquences du non respect préalable des fondamentaux que j'ai réprécisé en début de manuscrit. De plus, nombre d'aspects spécifiques à ces couches restent encore incompris dont l'origine de l'anisotropie induite et les causes à l'apparition prématurée des « stripe domains ». Une hypothèse a été discutée avec G. Suran portant sur la possible germination de clusters de cobalt de symétrie trigonale localisés près des éléments de transition [21]. Ces derniers conduiraient à l'existence d'anisotropies biaxiale dans le plan et perpendiculaire (K_{\perp}^{sup}) lorsque ces clusters possèdent un axe « c » préférentiellement hors du plan. L'ordre de grandeur de $K_{\perp}^{\text{sup}} \sim 4 \text{ à } 5 \cdot 10^5 \text{ erg/cc}$ pourrait justifier la valeur expérimentale de l'épaisseur critique $d_c \sim 100 \text{ nm}$ d'après l'équation 19 du chapitre 1, mais dans certains cas seulement.

8. Conclusion

Dans les pas de l'état de l'art établi, nous avons passé en revue les avantages et les inconvénients du Permalloy et des alliages amorphes de CoZr, deux matériaux répondant a priori à une évolution naturelle des « massifs » vers les couches minces. Les difficultés sont cependant nombreuses et réelles et les contourner est indispensable à l'intégration dans les microdispositifs que nous visons. En ce sens, les *fondamentaux* établis a posteriori sont d'une grande utilité pour l'optimisation des propriétés de ces matériaux. Cependant, ce deuxième chapitre se conclue sur le constat que les efforts sont ailleurs pour adresser véritablement le problème des hautes perméabilités au-delà du GHz. C'est la raison pour laquelle, je vais orienter la suite de notre travail vers les couches minces nanocristallisées issues du domaine du « data storage » que je connais bien. Ces couches, nouvelles pour les hyperfréquences au moment où on les aborde, ont le potentiel d'une plus grande stabilité (avérée pour les têtes d'écriture) et celui d'une aimantation à saturation élevée ($\sim 2 \text{ T}$) puisque les alliages de fer sont cette fois accessibles, ce que ne permettaient pas les alliages amorphes en couches minces. C'est l'objet du troisième chapitre.

References

1. "Integrated magnetic recording heads," J-P Lazzari, I. Melnick, IEEE Trans. Mag., Vol. MAG-7, No.1, pp.146-150, 1971
2. "Micromagnetics of laminated permalloy films", J.C. Slonczewski, B. Petek, B.E. Argyle, IEEE Trans. Mag., Vol. 24, N°3, pp. 2045-2053, 1988
3. "Etude du comportement dynamique de la perméabilité magnétique de microstructures élémentaires et de circuits fermés réalisés à partir de couches ferromagnétiques douces », R. Hida, Thèse de l'Université Claude Bernard Lyon-I, 2004
4. "GMR head for helical-scan recording with a 5000-h head life", K. Hallamasek, M. Boots, F. Souchon, R. Hida, M. Panabiere, J.B. Albertini, B. Viala, IEEE Trans. Mag., Vol. 39, No. 5, Part. 2, pp. 2387-2389, 2003
5. "Noyau magnétique miniature, capteur le comportant et procédé pour le fabriquer", H. Joisten, R. Cuchet, B. Viala, M. Audoin, R. Hida, N°EN05 12674

6. "Microfluxgate performance improvement in microtechnology", H. Joisten, B. Guilhamat, M. Audoin, J.M. Leger, R. Cuchet, G. Barrois, J.B. Albertini, P. Gaud, P. Renaux, D. Bloch, B. Viala, IEEE Trans. Mag., Vol. 41, Issue 11, pp. 4356-4358, 2005
7. "Procédé d'obtention d'un circuit magnétique fermé, circuit et dispositif correspondant", R. Hida, B. Viala, B. Orlando, *N°EN 06 07924*
8. "Bobinage solénoïde optimisé", B. Orlando, B. Viala, *N°EN 06 10521*
9. "Noyau magnétique fermé comportant plusieurs branches, et micro-inductance intégrée comportant un tel noyau magnétique fermé", B. Orlando, B. Viala, *N° EN 06 09273*
10. "Bobinage solénoïde annulaire, bobinage comportant plusieurs branches de bobinage et micro-inductance comportant l'un des bobinages", B. Orlando, B. Viala, *N°EN 06 09274*
11. "Noyau magnétique fermé en forme de spirale et micro-inductance intégrée comportant un tel noyau magnétique fermé", B. Orlando, B. Viala, *N°E N 06 09714*
12. "Low-Resistance Integrated Toroidal Inductor for Power management", B. Orlando, R. Hida, R. Cuchet, M. Audoin, B. Viala, D. Pellissier, X. Gagnard, P. Ancey, IEEE Trans. Mag, Vol. 42, pp. 3374, 2006
13. "Contributions à la conception, à la réalisation et à l'analyse de micro-inductances intégrées avec matériaux ferromagnétiques. Applications aux inductances pour la conversion continue-continue et aux inductances variables MEMS pour circuits microondes reconfigurables », B. Orlando, Thèse de l'Université de Limoges, 2007
14. "Structural and magnetic properties of amorphous FeBSi alloys with quenched-in nanocrystalline phase", E. Ferrara, F. Fiorillo, M. Pasquale, A. Stantero, M. Baricco, C. Béraud, J. Degauque, B. Viala, E. du Trémolet de Lacheisserie, J. Lüning and J.L. Porteseil, Key Engineering Materials, Vol. 81-83, pp. 189-194, 1993
15. "The Curie temperature and magnetization of Fe-base amorphous binary alloys containing transition metals", K. Fukamichi, J. Gambino, IEEE Trans. Mag., MAG-17, No. 6, pp. 3059, 1981
16. "Integrated on-chip inductors using magnetic material", D.S. Gardner et al., J. Appl. Phys., Vol. 103, 07E927, 2008
17. "Soft magnetic materials application in the RF range", M.Yamaguchi, K.H. Kim, S. Ikedaa, JMMM, Vol. 304, pp. 208, 2006
18. "High frequency magnetic properties of CoZrNb films deposited by dynamic sputtering technique for GHz-Si-integrated planar inductors", B. Viala, O. Valls, P. Gaud, M. Aïd, R. Cuchet, D. Damiani, M. Ledieu and O. Acher, Trans. Mag. Soc. Japan, vol. 2, No. 5, pp. 384-387, 2002
19. "RF planar ferromagnetic inductors on silicon", B. Viala, A. S. Royet, P. Gaud, O. Valls, M. Ledieu and O. Acher, IEEE Trans. Mag., Vol. 40, No. 4, pp.1999-2001, 2004
20. "Effect of patterned magnetic shields on high-frequency integrated Inductors", A.M. Crawford, S.X. Wang, IEEE Trans. Mag., Vol. 40, No. 4, pp. 2017, 2004
21. "Magnetic anisotropy induced by field applied during deposition in sputtered amorphous CoZr-rare earth thin films", G. Suran, H. Ouahmane, J. Sztern, IEEE Trans. Mag., Vol. 29, No. 6, pp. 3055, 1993

Chapitre 3 : Les films nanocristallins de Fe-N

1. Introduction
2. Nano-ingénierie des couches minces
3. Ajustement des propriétés physiques
4. Epaisseur critique
5. Dynamique et intégration
6. Réalisations technologiques
7. Alternative au Fe-N
8. Conclusion

1. Introduction

Remédier aux carences du NiFe polycristallin et du CoZr amorphe impose un changement de stratégie. C'est dans l'étude des couches minces nanocristallines de Fe-N, effectuée au cours de mon post doctorat, que germera l'idée. Je précise qu'elles ne sont pas, à ce moment-là, utilisables en l'état pour les hyperfréquences. Leur domaine de prédilection est de celui des têtes pour disque dur (HDD) dont l'augmentation drastique des densités (10 GB/in^2) a rapidement imposé la nécessité de pôles d'écriture à très forte aimantation ($\sim 2 \text{ T}$). Les fréquences de fonctionnement restent centrées autour du MHz. Les couches de Fe-N ont été introduites pour cela mais leur propriété de base ($4\pi M_s$ et ρ) les situent déjà au centre de notre feuille de route. Je reviens ici sur la métallurgie des composés Fe-N qui offre de nouveaux leviers d'ajustement en termes de nano ingénierie de la structure qui vont nous conduire dans le domaine des hyperfréquences. Je terminerai par une variante originale avec les couches « granulaires » Fe-N-O qui présentent des résistivités hors normes ($\sim 1000 \mu\Omega.\text{cm}$). Je reviendrai alors sur la définition de « granulaire ».

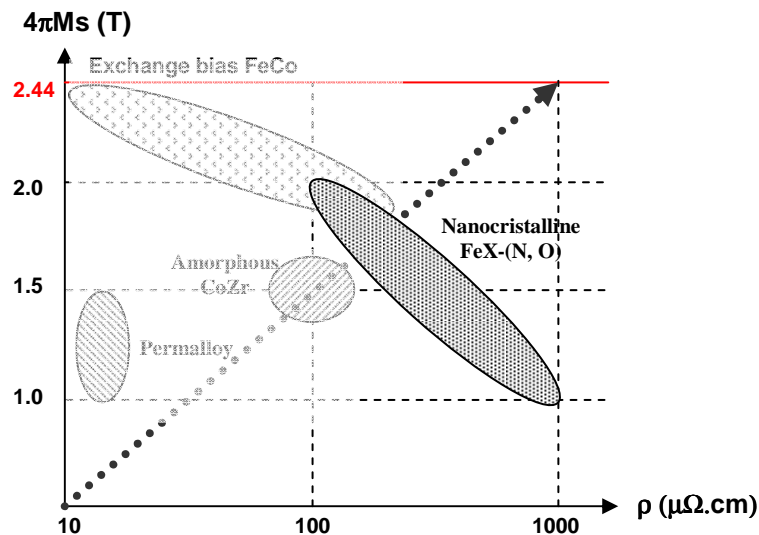


Fig.1: feuille de route pour les couches ferromagnétiques douces pour la RF, d'après nos travaux

2. Vers la nano-ingénierie des films

Il existe aujourd'hui une littérature abondante à propos des films à base de Fe-N sur laquelle je ne reviendrai pas. Je redirige simplement le lecteur sur les noms qui ont marqué les principaux développements historiques : M. Kryder (Seagate), J.A. Barnard et W.D. Doyle (MINT Alabama) et J.D. Roozumboom (Philips). Par contre, je souhaite ici redonner une visibilité quant aux phénomènes physiques de base qui régissent les propriétés de ces films via la « nitruration » du fer. Je continuerai à parler de « nitruration » par commodité bien que ce soit un abus de langage puisqu'il s'agit d'incorporer les atomes d'azote en solution solide uniquement. La clé du développement de ces films porte précisément sur l'extension de la limite de solubilité de l'azote dans le fer, ce à quoi je me suis particulièrement intéressé.

2.1 Loi de Sieverts

Une partie de mon post doctorat a consisté à établir les conditions optimales à la « nitruration » du fer en couches minces. L'objectif initial était de se recentrer sur les compositions les mieux adaptées à partir des travaux préliminaires divulgués dans la

littérature (FeSiN [1], FeAlN [2], FeTaN [3]...). Je reprends donc ici principalement les travaux de J.F. Elliott du MIT [4] qui revient lui-même sur la loi de Sieverts datant de 1935. Ceci permet d'avoir les bases thermodynamiques des mécanismes de solubilité de l'azote dans le fer liquide en présence d'éléments d'alliage.

La loi de Sieverts prédit que la concentration massique d'azote (%N) dissout dans le fer dépend de la racine carrée de la pression partielle de gaz (P_{N_2}) à laquelle le bain est exposée.

$$\% N \propto \frac{\sqrt{P_{N_2}}}{f_N} \quad \text{Eq. 55}$$

L'expression fait apparaître le coefficient d'activité de l'azote (f_N) qui est défini de la manière suivante où « j » représente l'élément d'addition dans le fer.

$$f_N = \frac{\% N(Fe - pur)}{\% N(Fe - j)} \quad \text{Eq. 56}$$

Dans la pratique, on se sert d'un coefficient normalisé par rapport au pourcentage massique de « j ». C'est le coefficient d'interaction $e_N^{(j)}$ qui a été tabulé dans la littérature pour un très grand nombre d'alliages binaires de fer.

$$e_N^{(j)} = \frac{\partial \log(f_N)}{\partial (\% j)} \quad \text{Eq. 57}$$

$e_N^{(j)}$ traduit simplement la propension à former ou non préférentiellement des nitrures de « j » dans l'alliage Fe-j. Si la valeur est positive, c'est au profit de précipités de j-N et au détriment de la solution solide et inversement si la valeur est négative l'élément d'addition a peu d'affinité pour l'azote et donc favorise l'incorporation en solution solide dans le fer.

A partir de ces expressions, on est en mesure de calculer le taux d'azote en solution solide dans presque n'importe quel alliage de fer sous réserve de connaître $e_N^{(j)}$. Ceci conduira à valider pour la première fois la loi de Sieverts sur des couches minces avec l'exemple des films de FeTaN de l'université d'Alabama. Ces films sont élaborés par PVD-magnétron sous faible pression partielle de N_2 . On définira ici P_{N_2} comme le rapport du débit volumique de N_2 sur le débit total de gaz Ar + N_2 .

Je démarrerai par la figure 1 qui montre l'excellente adéquation entre expériences et calculs avec ici $e_N^{(Ta)} = -0.055$, d'après [4].

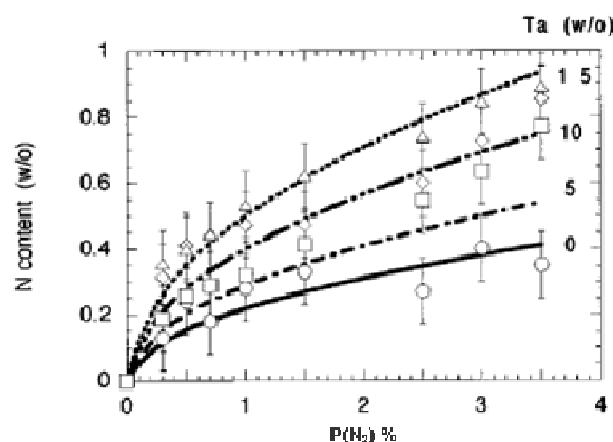


Fig.2: concentration en azote interstitiel dans les films nanocristallins de FeTaN (0.5 μm d'épaisseur) et tendances théoriques d'après la loi de Sieverts.(extrait de [5])

Pour conserver l'analogie le fer en phase liquide, nous devons considérer que le dépôt a lieu dans des conditions d'activation thermique (100°C à 150°C) suffisante avec combinaison d'absorption à la surface et de diffusion dès les premières couches monoatomiques formées sur le substrat. L'expérience confirmera que si la température du substrat est inférieure à 80°C l'efficacité de la nitruration chute considérablement. La suite des résultats présentés ici concerne donc exclusivement des procédés pour lesquels les températures ont été expérimentalement vérifiées et se concentrent autour d'une valeur moyenne de 130°C.

Suite à la validation de la loi de Sieverts aux couches minces d'alliage de fer réalisées sous faible pression partielle d'azote, je proposerai une démarche prédictive originale au regard de la sélection de l'élément d'addition « j ». La figure 3 montre les principales tendances théoriques que l'on peut obtenir pour des éléments « j » dont l'affinité avec l'azote diffère radicalement (voir tableau 1).

	Si	Al	Ta	Zr
$e_N^{(j)}$	+ 0.047	+ 0.0025	- 0.034	- 0.67

Tab.1 : valeurs du coefficient d'interaction $e_N^{(j)}$ pour les alliages binaires de fer avec « j » = Si, Al, Ta et Zr [4].

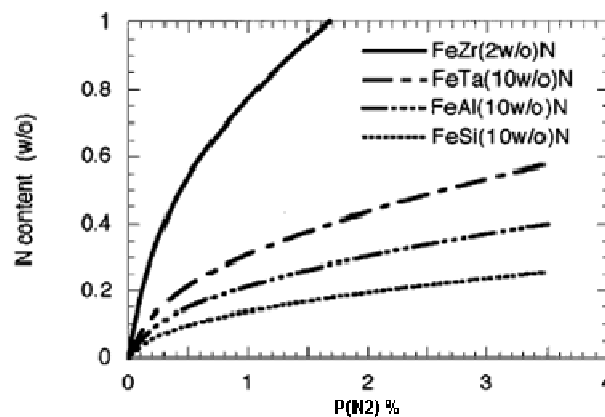


Fig.3: prévision de la concentration en azote interstitiel dans les films de Fe-j d'après la loi de Sieverts avec « j » = Si, Al, Ta et Zr, respectivement. (extrait de [5])

L'intérêt de ce calcul est de montrer immédiatement que les candidats de choix ne sont pas forcément ceux hérités de l'état de l'art des « massifs » dont principalement FeSi et FeAl. En ce sens, le choix de FeTa est d'avantage justifié mais c'est sans conteste le groupe Fe-(Zr, Hf) qui présente le meilleur potentiel. Bien sûr, ces conclusions pourront être nuancées au regard des constantes magnétocristallines et de magnétostriction propres à chaque alliage binaire comme nous le verrons dans la suite.

Ces considérations cachent une autre loi fondamentale, celle de Vegard (1921), qui établit que le paramètre de maille (a) des alliages binaires varie proportionnellement avec la composition.

$$a = a_0 + Vg \times at.\%(y) \quad \text{Eq. 58}$$

(on parle habituellement de « pente de Vegard » que je noterai ici Vg et qui s'exprime en $\text{\AA} \times 10^{-4} / at.\%$)

En présence d'un élément d'alliage, on comprend assez intuitivement que la limite de solubilité de l'azote dans le fer puisse aussi dépendre de son paramètre de maille initial. On peut donc ajouter au critère fondé sur le coefficient d'affinité $e_N^{(j)}$, celui sur le paramètre de

maille d'origine qui dépend principalement du diamètre atomique de l'élément « j », ce que traduit la dite « pente de Vegard ». Pour résumer, on peut considérer que les éléments de transition à gauche du fer (soit Ta, Hf et Zr) dilatent la maille du fer par pur effet de taille alors que les éléments de droite (soit Al et Si) agissent par effets de répulsion électronique. Les effets sur la maille du fer sont nettement plus modérés dans le dernier cas. Les tendances d'après Sievert et Vegard convergent donc vers le même choix pour « j » confirmant celui pour Ta (Fig. 4) et désignant Hf comme un candidat à plus fort potentiel encore (Tab. 2).

Vg	Ta	Zr	Hf
(Å.10 ⁻⁴ .at% ⁻¹)	56.28	104.87	112.98

Tab.2 : valeurs de la pente de Vegard pour les alliages binaires de fer avec Ta, Zr et Hf, respectivement [6].

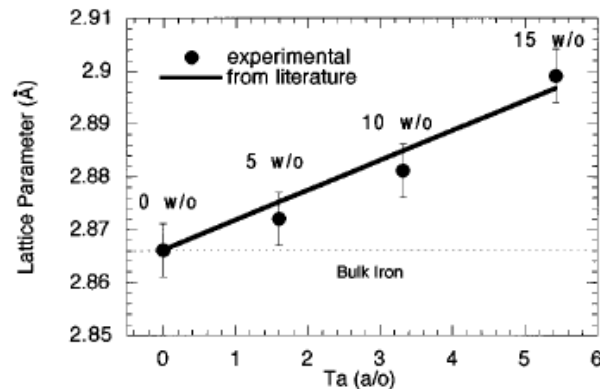


Fig.4 : dépendances expérimentale et théorique (loi de Vegard) du paramètre de maille des couches minces de FeTa en fonction de la teneur en Ta (at.%). (extrait de [5])

Les conditions à l'incorporation d'azote en solution interstitiel dans le fer et à l'extension de sa limite de solubilité (~ 25 % at.) sont maintenant clairement établies. La suite de nos travaux consistera en l'exploitation de cette fenêtre de procédé théoriquement très large. Dès lors, cette démarche nous différencie significativement de celle de l'état de l'art.

2.2 Contrôle de l'anisotropie magnétocristalline

L'incorporation en quantité suffisante de N dans la maille Fe (bcc) offre maintenant le moyen supplémentaire recherché pour diminuer K_1 au côté de la réduction nécessaire de la taille des cristallites D - *premier des fondamentaux* -. En effet, le paramètre de maille a_0^j du réseau cristallin Fe-j devient une grandeur ajustable avec la dissolution de l'azote $a(N)^j$. Il en résulte une dilatation contrôlable de la maille $\varepsilon(N)^j$ ou de manière équivalente une contrainte s'exerçant sur le réseau cristallin $\sigma(N)^j$, ces deux grandeurs étant des fonctions monotones du pourcentage massique de N d'après la loi de Sieverts.

$$\varepsilon(N)^j = a(N)^j - a_0^j \quad \text{Eq. 59}$$

$$\sigma(N)^j = - (C_{11} - C_{12}) \times \varepsilon(N)^j \quad \text{Eq. 60}$$

avec C_{11} et C_{12} les constantes d'élasticité de Fe-j.

En toute rigueur, il convient de préciser que ces considérations reposent sur l'hypothèse d'une déformation tétragonale du réseau, c'est-à-dire que la maille n'est dilatée que dans le plan xy et non selon z (sans quoi la moyenne spatiale serait nulle). A noter également que la contrainte que subit le réseau est compressive (d'où le signe « - ») car le film est solidaire d'un substrat supposé rigide et sans possibilité de relaxation à l'interface.

En tenant compte des constantes monocristallines de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} de l'alliage Fe-j - *négligées dans le chapitre 1* - on peut calculer la constante d'anisotropie locale moyenne K_{local} dans le plan xy du cristal en fonction de $\sigma(N)^j$ ou de $\varepsilon(N)^j$. Il suffit ensuite de substituer K_{local} à K_1 dans les équations que nous avons déjà vues. Il existe pour cela deux expressions classiques dans la littérature, celle de Doyle et Finnegan [7] et celle de Takahashi [2] que je ne redéveloppe pas ici par soucis de concision.

Par contre, je tiens à montrer au lecteur le côté prédictif de la démarche avec les figures qui suivent (extraites de [moi]). Elles montrent que l'on peut parfaitement anticiper $\varepsilon(N)^j$ ou $\sigma(N)^j$ à partir de la loi de Sieverts et calculer la dépendance qui en découle de K_{local} à partir des modèles cités ci-dessus. L'intérêt est de voir dans quelle mesure les deux tendances peuvent ou non coïncider. L'application porte ici sur FeSiN et FeAlN, concurrents affichés du FeTaN.

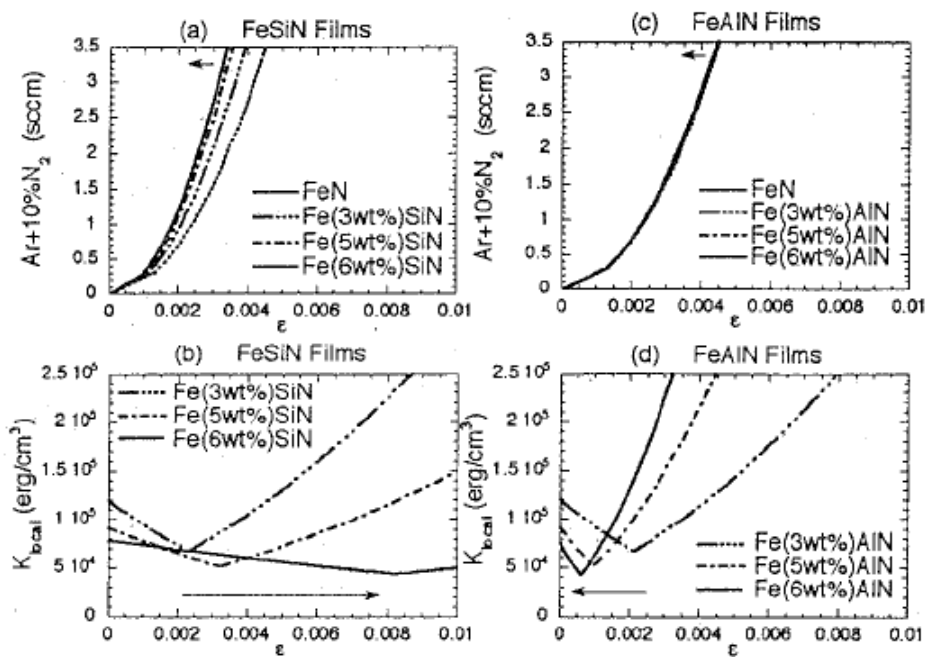


Fig.5 : dépendances théoriques de la dilatation du réseau ε d'après la loi de Sieverts et de la constante d'anisotropie locale moyenne K_{local} en fonction de ε pour FeSiN et FeAlN. Note : les calculs sont fondés sur les constantes monocristallines de la littérature des « massifs [Boz]. (extrait de [5])

Les figures (b-d) montrent clairement l'existence d'un minimum de K_{local} pour une valeur critique que j'appelle ε_c .

$$\varepsilon_c = \frac{K_1}{6\lambda_{100}(C_{11} - C_{12})} \quad \text{Eq. 61}$$

On peut alors vérifier très simplement pour tout composé Fe-j si le minimum de K_{local} est dans la fenêtre de procédé de nitruration ou non. Dans le cas du FeSiN, le lecteur peut constater que ce minimum est rapidement hors d'atteinte en raison de la faible limite de solubilité de N. A l'inverse, dans le cas du FeAlN les valeurs de ε_c deviennent rapidement très faibles si bien qu'elles seront difficilement maîtrisables dans la pratique et la plupart des couches étudiées seront largement « sur-nitrurées ». On tient là une partie des explications aux difficultés observées par nombre d'expérimentateurs sur ces compositions au regard du caractère doux.

Je reviens maintenant sur le cas de FeTa(Hf)N qui bénéficie de confrontations avec l'expérience, notamment, au travers de la mesure du facteur de structure d'Hoffmann (S) qui

est une traduction directe de de K_{local} . Il suffit de reprendre l'équation 11 du chapitre 1 et de substituer à K_1 les expressions précédentes de K_{local} .

$$S = \frac{K_{local} \times D}{\sqrt{n}} \quad \text{Eq. 11-bis}$$

Les figures qui suivent confirment que le choix du Ta - *similaire pour Hf* - conduit effectivement à une plage nettement plus étendue pour ϵ (jusqu'à 10^{-2}) que dans les cas précédents. Ceci permet de couvrir ici l'intégralité de la dépendance de S ou de K_{local} en fonction de ϵ et d'observer expérimentalement l'existence de ce minimum. De plus, on fera le constat que les valeurs correspondantes de ϵ_c sont en accord avec l'équation 61.

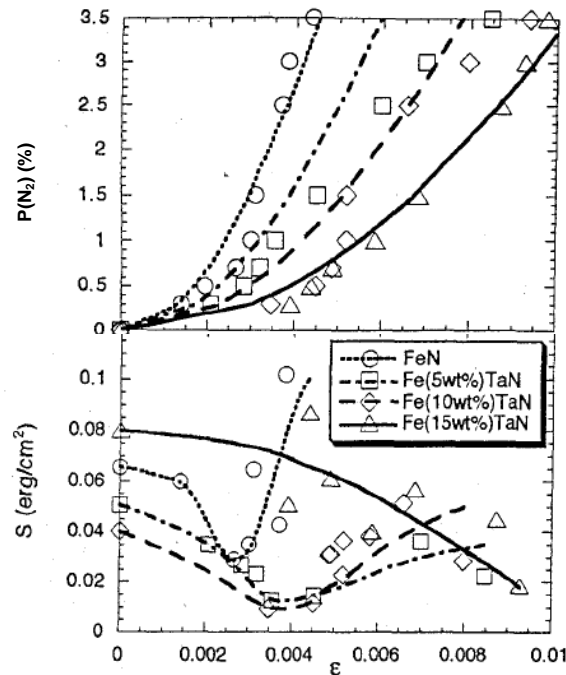


Fig.6 : dépendances expérimentales de la dilatation du réseau ϵ avec la pression partielle d'azote PN_2 (loi de Sieverts) et du facteur de structure S en fonction de ϵ pour FeTaN. Note : S est extrait de mesures de « transverse biased permeability » [Hoffmann]. (extrait de [5])

L'intérêt de mesurer S est d'en extraire une valeur quantitative de K_{local} (sous réserve de connaître la taille des grains) qui peut être directement confrontée aux modèles de Doyle Finnegan ou de Takahashi. C'est que montre la figure 7 avec un accord là aussi satisfaisant.

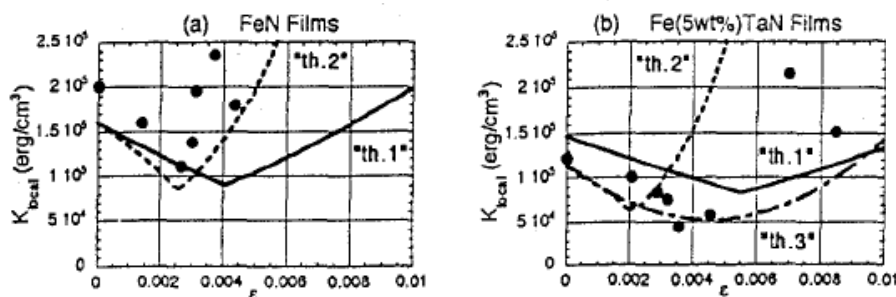


Fig.6 : comparaison des dépendances expérimentales et théoriques de la constante d'anisotropie moyenne locale K_{local} en fonction de la dilatation du réseau ϵ pour FeN (a) et FeTa5wt.%N (b). Note : les labels « th.1-3 » correspondent à différentes estimations de K_1 et λ_{100} qui incluent l'estimation sur des couches monocristallines de référence [Var]. (extrait de [5])

La manipulation du paramètre de maille est donc un levier additionnel au regard du premier des *fondamentaux* et une illustration de ce que j'ai appelé la nano-ingénierie des couches minces ferromagnétiques. Je reviens maintenant au premier levier, celui sur de la taille des grains, dont l'évolution sous l'effet de la *nitruration* est également très singulière.

2.3 Contrôle de la taille des cristallites

La figure 7 résume l'évolution de la microstructure en fonction de la pression partielle de N_2 pour les films de FeTa(10wt.%)N et FeHf(10wt.%)N. Cette figure est l'image d'un suivi systématique de la microstructure et qui cumule des analyses par XRD, RBS et TEM/EELS effectuées au cours de la thèse de S. Couderc [9].

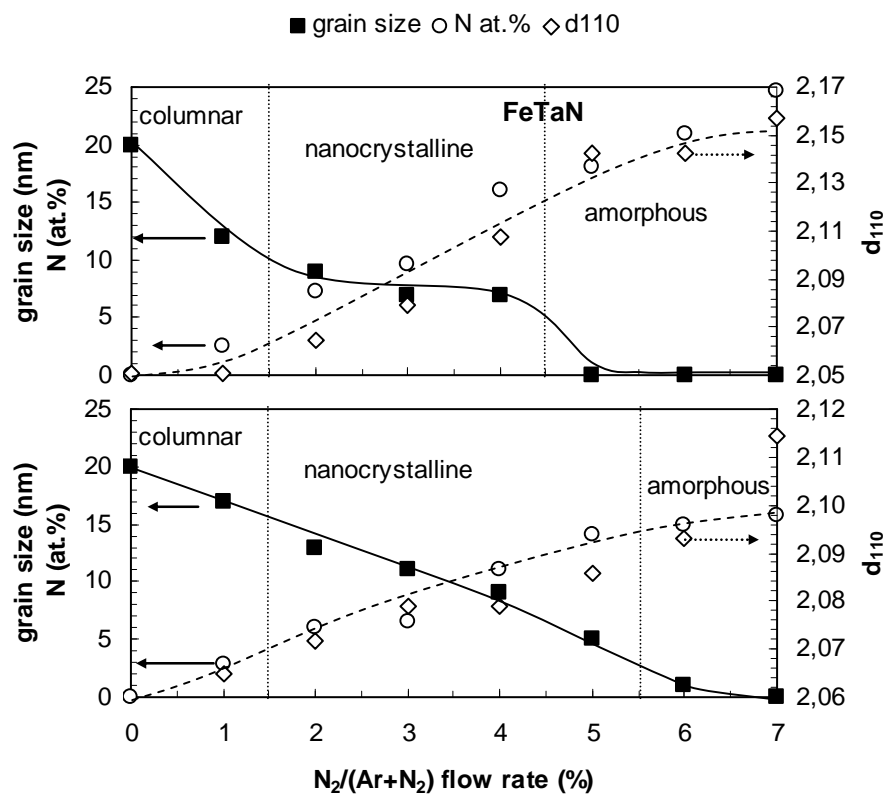


Fig.7 : effets de la nitruration sur la microstructures des films de FeTa(10wt.%)N et FeHf(10wt.%)N. (extrait de [8])

Les tendances établies sont éloquentes. On met très clairement en évidence ici les effets antagonistes mais fortement corrélés qui touchent à la taille des cristallites et au paramètre de maille. A l'augmentation du paramètre de maille correspond une réduction graduelle de la taille des grains. De plus, on distingue clairement trois régimes de croissance : polycristallin, nanocrystallin et pseudo-amorphe avec une forte tendance colonnaire pour les deux premiers. On confirme par ailleurs que la dilatation de la maille (ici on suit la distance inter-réticulaire d_{110}) est bien proportionnelle à la concentration atomique en N (ici mesurées par RBS).

On a donc à travers l'enrichissement en azote interstitiel un moyen d'action direct sur la taille des cristallites, ce qui est unique à notre connaissance. Sous réserve d'une limite de solubilité suffisamment grande (ce que nous avons résolu précédemment), la plage d'ajustement peut être très large, ici de 25 nm à qq. nm seulement. Mais ce moyen n'est pas décorrélié du précédent. Il n'y a pas de véritable explication physique à cela. La seule hypothèse plausible est d'être en face d'un mécanisme de nucléation avec une tension de surface négative pour laquelle une augmentation du paramètre de maille conduit théoriquement à une contraction

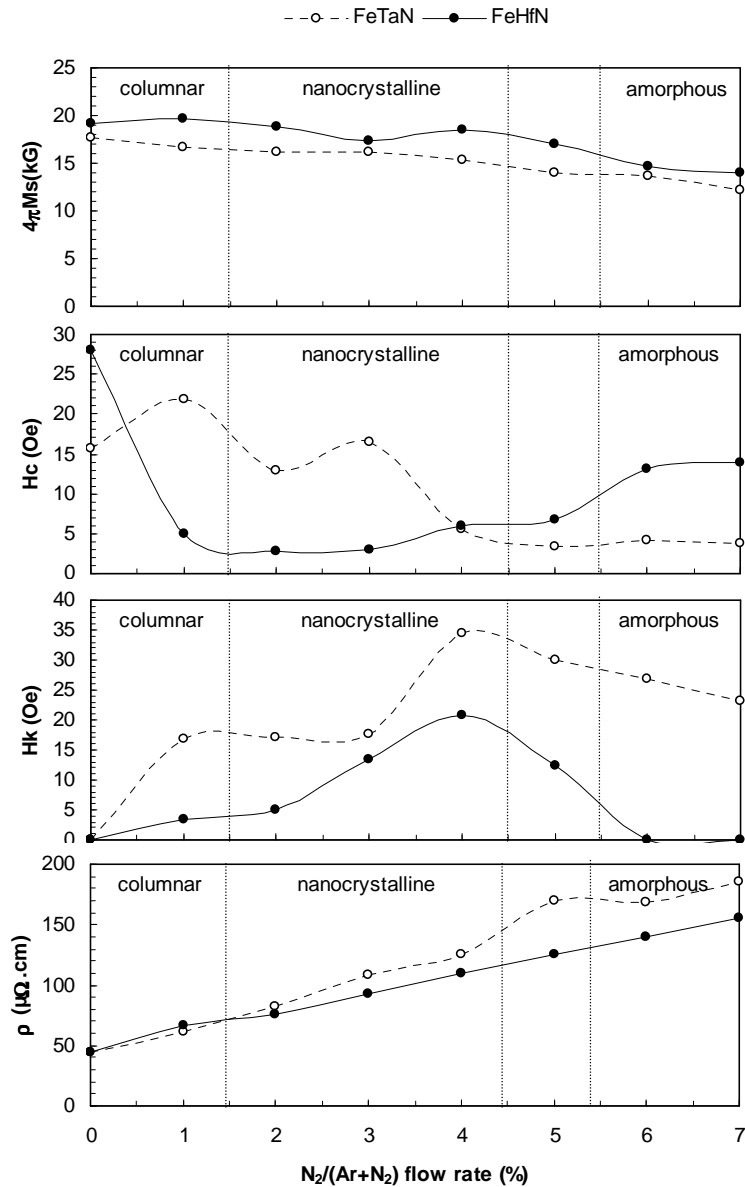


Fig.9 : évolutions de l'aimantation à saturation $4\pi M_s$, du champ coercitif H_c , du champ d'anisotropie H_k et de la résistivité ρ en fonction de la pression partielle d'azote pour des films de FeTa(10wt%)N et FeHf(10wt%)N d'épaisseur 0.1 μm . (extrait de [8])

La deuxième tendance très importante concerne le champ coercitif sur lequel on observe en moyenne une réduction par un facteur 10. C'est la traduction directe de l'évolution du facteur de structure S que l'on vient de décrire. En d'autres termes, il s'agit de la matérialisation des effets combinés de la dilatation de la maille et de la réduction de la taille des grains en vertu du principe de l'anisotropie magnétocristalline évanescence, ce qui reste tout à fait exceptionnel. En revanche, l'ajustement du caractère doux à ses limites. C'est la formation progressive de la phase intergranulaire à faible T_c qui en est responsable. Elle tend à relâcher le couplage d'échange intergranulaire, ce que l'on perçoit pour le FeTaN à forte pression partielle d'azote en raison d'une limite de solubilité de la phase cristalline plus faible que pour FeHfN où cette limitation n'est pas atteinte expérimentalement. Les différences observées sur les deux compositions sont principalement imputables à celles sur les constantes magnétiques monocristallines (K_1 , λ_{100} et λ_{111}). On pense, notamment, que λ_{100} est nettement plus élevée avec Hf que Ta, ce qui permet d'atteindre le minimum de K_{local} pour des valeurs plus faibles de ϵ . Mais, ces constantes ne sont connues avec précision.

La troisième tendance concerne l'anisotropie induite qui n'est pas présente initialement. Elle a pour origine la distorsion tétragonale de la maille du fer et l'occupation préférentielle de sites interstitiels octaédriques comme l'a décrit Rozemboom [12]. On observe une tendance quasi-monotone envers la concentration atomique en azote puis une chute graduelle qui démarre à la transition nanocristallin (100) / pseudo amorphe (200). Les valeurs maximales de H_k sont ici remarquables au sens de dépasser largement celles observées dans la littérature, ce qui nous conduira plus tard aux fréquences de résonance ferromagnétiques recherchées.

Nous justifierons ce comportement atypique au regard des l'état de l'art des têtes magnétiques par deux paramètres de procédé que nous avons optimisés spécifiquement :

- *la température de dépôt (~ 150°C) par thermalisation naturelle du substrat qui augmente considérablement le rendement de nitruration vis-à-vis de la pression partielle d'azote qui doit rester faible*
- *l'amplitude du champ magnétique statique appliqué pendant le dépôt qui grâce à un système modulable (entrefer) avec aimants en FeNdB a permis d'explorer des valeurs inhabituelles jusqu'à 200 Oe (contre qq. 10^{aines} habituellement). Nous pensons que la déformation magnétostrictive de la maille bcc du fer au cours de la croissance du film est maximale et que la probabilité d'occupation des sites octaédriques le devient aussi.*

La dernière tendance concerne la résistivité qui est un des facteurs limitant propres aux alliages ferromagnétiques pour les hautes fréquences. Comme attendu, la réduction de la taille des grains - *et également la formation de la phase intergranulaire amorphe et intrinsèquement plus résistive* - conduit à une dispersion importante des électrons de conduction (plutôt qu'à des interactions électroniques). Il en résulte une résistivité modulable de 50 à environ 150 $\mu\Omega.cm$, ce qui constitue un progrès très significatif devant celle du Permalloy, par exemple.

Au final, nous retiendrons deux compositions optimales offrant le meilleur compromis sur les propriétés de base comme résumé dans le tableau qui suit. Ces compositions sont proches des minima locaux de K_{local} .

	$4\pi M_s$ (T)	H_c (Oe)	H_k (Oe)	ρ ($\mu\Omega.cm$)
(FeTa)₈₃N₁₇	1.5	4	37	130
(FeHf)₉₀N₁₀	1.9	2	20	75

Tab.3 : compositions optimales (en % atomique) des films d'alliages FeTa(10wt.%)N et FeHf (10wt.%)N et propriétés magnétiques et électriques associées

Je conclurai partiellement cette partie en relevant la validité de la nano-ingénierie des couches minces de fer au travers de la « nitruration » qui permet de faire rentrer les alliages de Fe-j dans le périmètre du premier des *fondamentaux* malgré les difficultés annoncées au chapitre 1. Je formule une remarque à propos des valeurs de champs coercitifs annoncés comme optima dans le tableau précédent alors que les valeurs peuvent ne pas paraître faibles au lecteur. En effet, on peut relever, notamment, dans [10] des valeurs jusqu'à 0.3 Oe. Mais cette comparaison doit être nuancée au regard de l'équation 12 je rappelle ici sous une forme simplifiée. Elle indique très clairement qu'il est plus difficile de satisfaire au caractère doux en présence d'une plus forte anisotropie uniaxiale.

$$H_c \propto \frac{S\sqrt{D^4 K_u}}{M_s}$$

La différence est donc imputable aux valeurs de K_u qui sont dix fois plus élevées ici que dans [10], par exemple. La combinaison des propriétés présentées dans le tableau 2 est donc tout à fait exceptionnelle au regard de la littérature. Les épaisseurs utiles seront limitées à $0.3 \mu\text{m}$.

4. Epaisseur critique

Aborder le problème de l'épaisseur critique d_c n'est pas simple ici du fait d'une microstructure qui évolue grandement avec le taux d'azote ainsi que les principales constantes magnétocristallines, ce qui a notamment été regardée par [13-15]. Je me contenterai de donner au lecteur les grandes lignes au travers de la figure 10. Bien qu'il est une inversion tendance flagrante avec et sans incorporation d'azote, l'expérience se résume par l'observation d'une épaisseur critique générale de l'ordre de $0.3 \mu\text{m}$. Ceci est dû au fait que les signes de λ_{111} et σ s'inversent tous les deux sous l'effet de la nitruration. En effet, il a été établi que λ_{111} suit une variation monotone en fonction de %N et passe typiquement de $-20 \cdot 10^{-6}$ à $+20 \cdot 10^{-6}$ alors que λ_{100} change peu, soit $\sim +20 \cdot 10^{-6}$. De façon similaire, σ qui est principalement gouvernée par les contraintes internes dues à la dilatation de la maille passe de tensile ($\sigma > 0$) à compressif ($\sigma < 0$) dans les limites représentées en hachurées sur la figure 10. La limite est donc fixée entre 0.2 et $0.3 \mu\text{m}$.

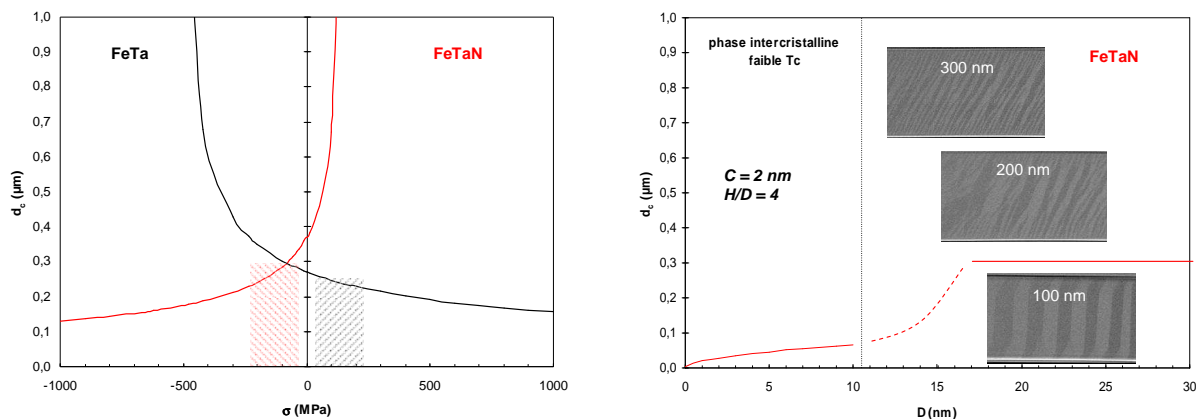


Fig.10 : épaisseur critique théorique d_c pour un film de FeTa(N) avec texture (110) en fonction de la contrainte plane isotrope σ ou de la taille des cristallites D selon le modèle structural. Note : pour le premier modèle, on utilise les constantes K_1 , λ_{100} et λ_{111} extraites de [varga] qui tiennent compte de N .

Étant donné le caractère naturellement colonnaire de ces films, on est en droit de se demander si cela n'influe pas aussi sur d_c d'après le modèle structural. Par contre, le procédé est ici optimisé en termes de risque d'oxydation (vide résiduel $\leq 5 \cdot 10^{-8}$ et pression partielle $\leq 3 \cdot 10^{-3}$ mbar) donc seule la phase intercrystalline amorphe à faible T_c peut être mise en cause. Toute fois, les signes probants de son existence n'apparaissent qu'après la transition où le film ne présente plus qu'une fine distribution de cristallites équiaxes dans cette matrice. Il est clair que les *stripe domains* y sont bel et bien présents à l'ambiante et disparaissent au profit de cycles carré dès que l'on abaisse la température [9, 10]. On peut schématiser l'évolution de d_c comme indiqué sur la figure 10 (à droite) où seule la première partie est effectivement calculée d'après les équations 19 et 27 du chapitre 1. On confirme l'existence systématique de « weak » *stripe domains* dans cette zone.

En somme, la limitation en terme d'épaisseur critique est imposée principalement par la valeur positive de λ_{111} et par l'état résiduel en compression des films, ce qui clarifie certaines contradictions dans la littérature.

5. Dynamique et intégration

Bien que très éloigné du Permalloy, la nano-ingénierie de la structure des films de Fe-N conduit à des facteurs de structure d'Hoffmann tout à fait semblables : $S \leq 10^{-2} \text{ erg.cm}^{-2}$. On peut donc s'attendre à un comportement dynamique conforme au modèle *macrospin* alors que les premiers résultats tirés de la littérature indiquaient une prédominance des fluctuations locales de l'anisotropie qui conduisait à des spectres « non-conformes » [10]. Je montre ici un choix de spectres qui confirment cette attente (voir aussi thèse de S. Couderc [9]).

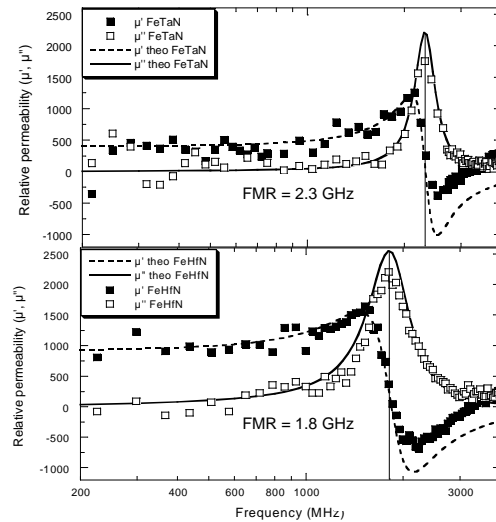


Fig. 11 : Spectres en fréquence de la perméabilité de monocouches de $(\text{FeTa})_{83}\text{N}_{17}$ et $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$ d'épaisseur de $0,1 \mu\text{m}$ non structurées ($4\text{mm} \times 4 \text{mm}$). Note : courbes théoriques « macrospin » en traits fins. (extrait de [8])

La nano-ingénierie des ces films est un succès dont témoignent les valeurs de F_r et de μ_{dc} nettement supérieures à celle du Permalloy (et du CoZr). Cet excellent résultat se double de valeurs de α particulièrement modérées (0.009 avec Ta et 0.012 avec Hf) qui sont à rapprocher des facteurs de structures S eux-mêmes particulièrement faibles pour ce type de films (voir discussion sur ϵ_c). De plus, la résistivité élevées de couches ($\sim 100 \mu\Omega.\text{cm}$) en permet l'exploitation jusqu'à 5 GHz sans limitation sur l'effet de peau dans la limite d'épaisseurs utiles de $\sim 0.1 \mu\text{m}$. Bien entendu, la contre partie sera d'utiliser ces films sous forme laminées pour satisfaire à des épaisseurs cumulées plus grandes. C'est ce que nous vérifierons mais je soulève auparavant des réserves contraignantes sur les figures qui suivent quant à la compatibilité thermique avec le dépôt des diélectriques.

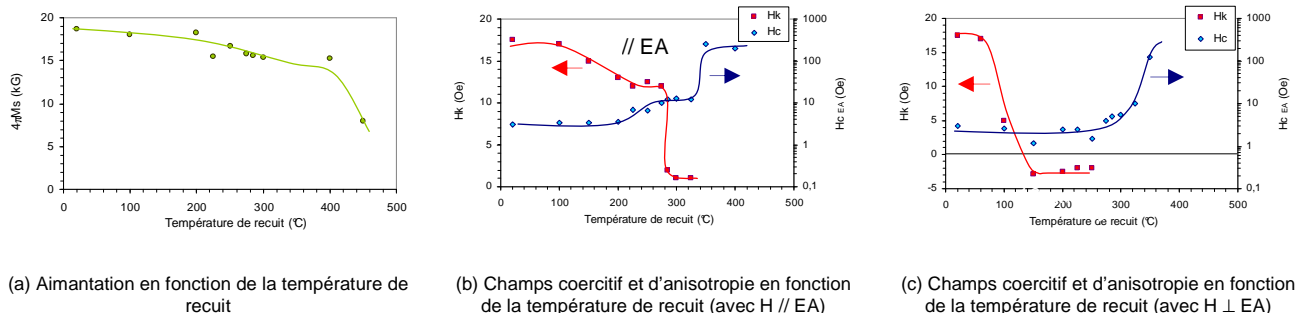


Fig. 12 : illustrations de la tenue thermique de $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$ avec recuit sous champ // et \perp . (Thèse S. Couderc)

En effet, force est de constater que la limite dominante envers la température (de recuit ici) concerne le champ d'anisotropie qui diminue de plus de 25 % à 200°C et s'annule à 300°C -

voire même change de signe dès 150°C en présence d'un champ de *bias* transverse. Ceci nous ramène donc dans des limites similaires à celles observées sur les films amorphes de CoZr. Je vais y revenir. Si ce résultat n'est pas bon, il est à nuancer car il n'affecte pas la compatibilité requise avec le dépôt d'un diélectrique comme la silice en couche mince qui requiert des températures minimales de l'ordre de 230°C en PECVD. Cette technique est privilégiée car elle permet jusqu'à 50 nm de conserver une bonne intégrité de la couche isolante

La mise en pratique du principe de l'*Edge Curling Wall*, condition nécessaire au deuxième des *fondamentaux* pour l'intégration, reste donc possible et sera appliqué de manière systématique comme illustré sur la figure 13. Ceci m'amène à ouvrir une parenthèse quant au passage du « pleine tranche » aux microstructures qui est a priori affecté par la résonance des parois des domaines de fermeture dont la fréquence est évaluée ici à 110 MHz. Toutefois, il est difficile d'en avoir une observation probante car les films de Fe-N ont une structure en domaines très particulière (voir insert Fig.13) où les domaines de fermetures sont eux même subdivisés. - ce qui peut s'apparenter à des domaines de bord dits en « épingles » dont l'origine est le plus souvent magnétostrictive - Par contre, le principe de l'*ECW* reste parfaitement exploitable et permet de restituer pleinement le comportement dynamique *macrospin* aux microstructures.

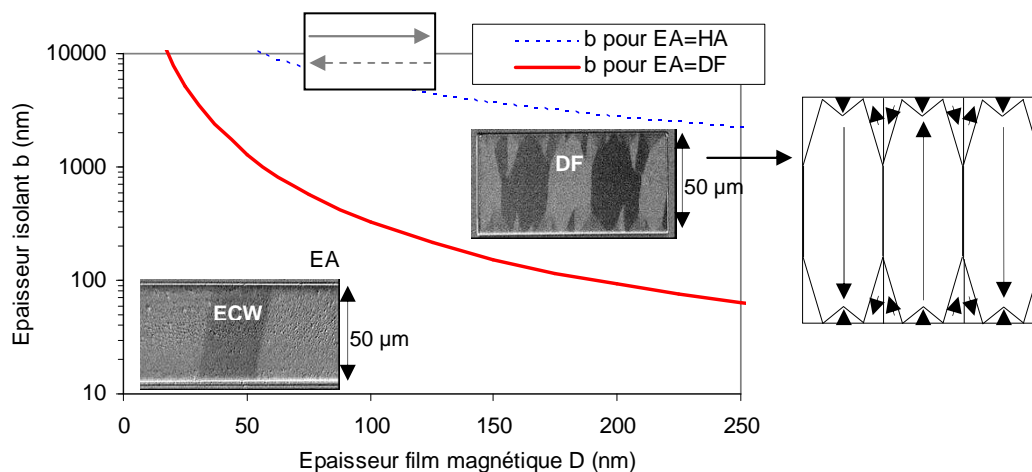


Fig. 13 : digramme de phase des états de la structure en domaines pour une microstructure de largeur 50 µm (*// Ku*) constituée par une multicouche [(FeHf)₉₀N₁₀(_{100nm})/ SiO₂(_{100nm})]x5-10 avec et sans couplage ECW. Note : en inserts, images Kerr et illustration de la configuration avec « splitted closure domains ». (Thèse S. Couderc)

Le spectre de la figure 14 en est l'illustration avec une multicouche cumulant 0.5 µm d'épaisseur et qui sera exploitée dans la filière des inductances RF.

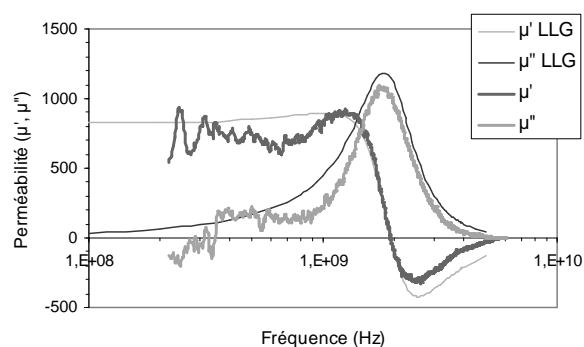
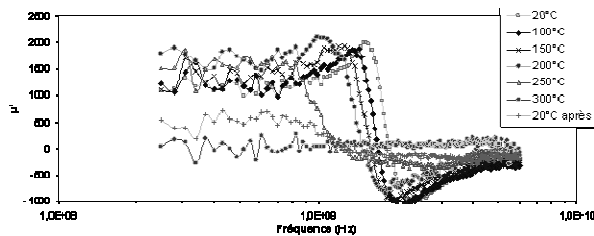
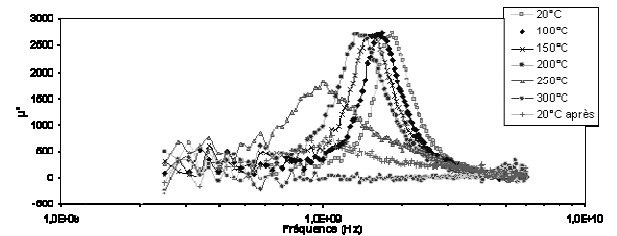


Figure 14 : spectres en fréquence pour une microstructure de largeur 50 µm (*// Ku*) constituée par une multicouche [(FeHf)₉₀N₁₀(_{100nm})/ SiO₂(_{100nm})]x5-10 avec couplage ECW. (Thèse S. Couderc)

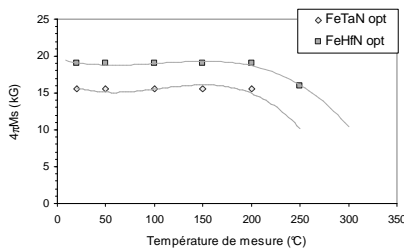
Je reviens maintenant sur la limite observée au regard de la température qui marque une contrainte très importante quant à l'utilisation de ces films. Cette carence n'est pas surprenante et rejoint un premier constat établi quelques années plus tôt. En effet, à toute solution solide on peut reprocher un caractère métastable car la probabilité de diffusion d'un site à l'autre est d'autant plus grande que l'occupation est partielle. Or, on a pensé - à tort ? - qu'en augmentant grandement et en atteignant la limite de solubilité avec les éléments d'addition appropriés ce problème serait résolu. Mais c'est sans penser que l'occupation des sites octaédriques de la maille du fer reste très partielle dans notre cas et c'est là même le fondement de l'existence de l'anisotropie induite [12]. On comprend donc que sous l'effet d'une activation thermique même modérée les atomes N puissent facilement diffuser pour occuper ces sites de façon beaucoup plus aléatoire, ce qui peut conduire à la disparition pure et simple de l'anisotropie induite ou à son « retournement » si soumis à un champ de polarisation à 90° de la direction d'origine, par exemple. Ce constat est frustrant au regard des efforts et des performances hyperfréquences établies et nous a conduit à regarder plus largement d'autres compositions. Je résume cette étude ici à un choix de figures qui correspondent à des mesures originales de perméabilité en fonction de la température effectuées au CEA Le Ripault.



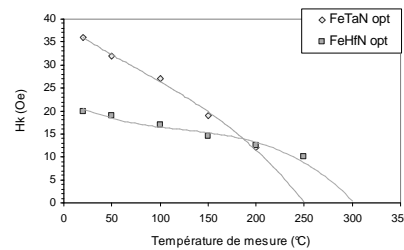
(a) Parties réelles de la perméabilité en fonction de la température pour la composition $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$



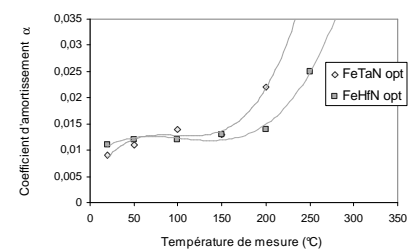
(b) Parties imaginaires de la perméabilité en fonction de la température pour la composition $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$



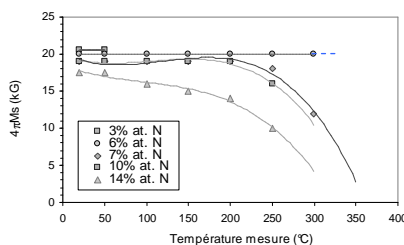
(c) Aimantations en fonction de la température pour $(\text{FeTa})_{83}\text{N}_{17}$ et $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$



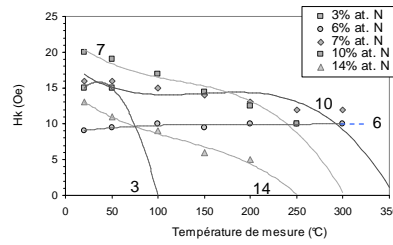
(d) Champs d'anisotropie en fonction de la température pour $(\text{FeTa})_{83}\text{N}_{17}$ et $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$



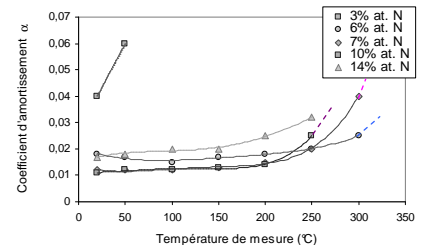
(e) Coefficients d'amortissement en fonction de la température pour $(\text{FeTa})_{83}\text{N}_{17}$ et $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$



(f) Aimantations en fonction de la température pour FeHfN avec différents % at. N



(g) Champs d'anisotropie en fonction de la température pour FeHfN avec différents % at. N



(h) Coefficients d'amortissements de Gilbert en fonction de la température pour FeHfN avec différents % at. N

Fig. 15 : comportements des couches de $(\text{FeTa})_{83}\text{N}_{17}$ et $(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10}$ en fonction de la température de mesure. Note : mesures dynamiques effectuées au CEA Le Ripault. (Thèse S. Couderc)

Pour les deux compositions initialement retenues, la « dénitration » croissante sous l'effet de la température est responsable d'une diminution quasi-monotone au départ de F_r à cause principalement de la diminution de H_k . On constate en marge de cet effet négatif que l'aimantation à saturation et le coefficient d'amortissement ne varient pratiquement pas. C'est seulement à partir de 200°C que la dégradation s'accélère touchant cette fois $4\pi M_s$ et α . Des analyses chimiques locales par EELS détecteront un début d'oxydation du fer que l'on supposera responsable des ces phénomènes. On note des tendances systématiquement plus défavorables avec Ta comme élément d'addition. Nos resterons donc préférentiellement sur les composés FeHfN en élargissant le champ d'investigation à d'autres compositions en azote. Du tri des résultats ressort une composition singulière avec N = 6 % at. qui se démarque par une plus grande stabilité de l'ensemble de ses caractéristiques jusqu' à 300°C. Je ne proposerai pas d'explication à cette amélioration pourtant significative parce que cela aurait nécessité des analyses physico-chimiques très fines qui n'entraient pas dans le cadre de l'étude que nous avons menée. C'est néanmoins un début de preuve – *mais qui arrivera trop tard dans la chronologie des applications que nous mettrons en œuvre* - que les films de Fe-N peuvent remplir les conditions requises.

Je propose d'illustrer maintenant la partie consacrée aux réalisations technologiques centrées sur les selfs radiofréquences intégrées malgré le caractère non pleinement optimisé des couches utilisées. A ce stade, ceci n'affecte que l'aspect lié principalement à la fiabilité et à la compatibilité CMOS au sens d'un procédé véritablement industriel. Mais, tous les éléments sont désormais rassemblés pour y répondre.

6. Réalisations technologiques

J'ai montré en fin de chapitre 2 une validation partielle de l'idée d'inductances RF spirales à écrans magnétiques avec la version amorphe du CoZrNb. Le gain sur les performances était modéré du fait d'une épaisseur limitée (0.1 μm). De plus, deux dépôts avec des directions d'anisotropie respectives à 90° l'une de l'autre s'avéraient nécessaires pour satisfaire à la particularité de la distribution radiale du champ magnétique planaire propre aux inductances spirales. Je montre ici, outre de confirmer l'intérêt du design des écrans qui nous est spécifique, que ces difficultés sont levées grâce à l'utilisation de la version lamellée ECW $[(\text{FeHf})_{90}\text{N}_{10(100\text{nm})} / \text{SiO}_2(100\text{nm})]_{\times 10}$ qui est. On bénéficie d'une épaisseur 10 fois plus élevée, d'un caractère 50 % plus perméable, du fait du $4\pi M_s$ élevé, et de l'absence de structure en domaines. Mais, c'est surtout l'obtention d'écrans magnétiques « bi-directionnels » à partir d'un dépôt unique que je souhaiterai mettre en avant ici. Il s'agit d'une avancée déterminante qui concilie possibilité d'augmenter très significativement les performances avec un coût de fabrication réduit, tout en évitant les risques d'interactions néfastes avec le premier dépôt - *on contourne de fait indirectement le manque de stabilité thermomagnétique de la phase Fe-N*. Ce résultat a été remarqué dans l'état de l'art et a fait l'objet d'une présentation invitée à INTERMAG Nagoya 2005 dans la session «RF inductors» [8]. Les faits marquants sont condensés ci-dessous regroupant résultats expérimentaux et résultats de simulation par éléments finis sur Ansoft HFSS. A ce propos, nous validons pleinement l'idée inscrite dans le troisième des *fondamentaux*, en relevant l'accord très satisfaisant entre mesures sur micro-inductances et simulations numériques utilisant le modèle *macro spin* de la perméabilité. Cette validation est d'importance et autorise une démarche prédictive que nous exploiterons pour évaluer l'intérêt de configurations plus complexes (topologie « sandwich », par exemple) en évitant coûts et délais de réalisation inutiles.

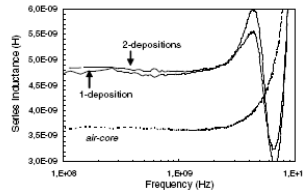
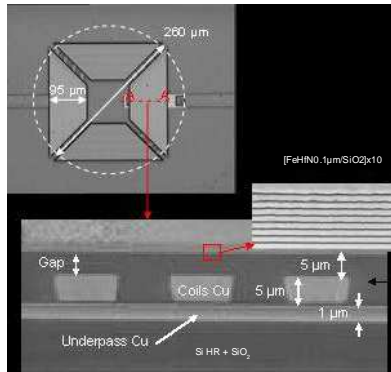


Fig. 5: measured series inductance for 3.5-turn square spiral inductors with 4 SMP on top with 100%-HA-excitation using 1 and 2 depositions, respectively, and comparison with the corresponding air-core inductor (de-embedded data).

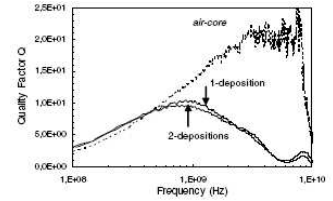


Fig. 6: measured quality factor for 3.5-turn square spiral inductors with 4 SMP on top with 100%-HA-excitation using 1 and 2 depositions, respectively, and comparison with the corresponding air-core inductor (de-embedded data).

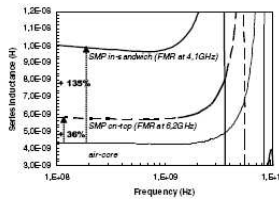


Fig. 9: simulated series inductance for the 3.5-turn square spiral inductors using SMP with 100% HA-excitation in *on-top* and *sandwich* configurations, respectively, (non-de-embedded data).

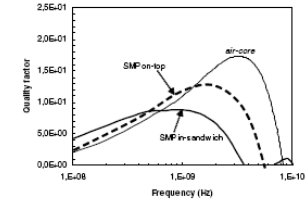


Fig. 10: simulated quality factor for the 3.5-turn square spiral inductors using SMP with 100% HA-excitation in *on-top* and *sandwich* configurations, respectively, (non-de-embedded data).

Fig. 16 : principales caractéristiques des inductances spirales à écrans magnétiques en version laminée [(FeHf)₉₀N₁₀(100nm)/SiO₂(100nm)]_{x10} et détails technologiques à gauche sur le montage photo. (extrait de [8])

On tirera de ces réalisations les conclusions suivantes :

- 1 : ce travail est parmi les premiers a démontré la possibilité de gains sur la valeur d'inductance de selfs spirales compris entre 36 % et 135 %, ce qui est remarquable étant donné la nature très défavorable du couplage électromagnétique spécifique à cette topologie d'inductance.
- 2 : pour la première fois aussi, on observe clairement des résonances ferromagnétiques effectives (c'est-à-dire incluant la contribution de l'effet de forme) à des fréquences très élevées, ici ~ 6 GHz avec des niveaux *exceptionnels* tant pour les parties réelle qu'imaginaire (à 1 GHz : $\mu' = 120$ et $\mu'' = 3$ ou $\text{tg}\delta = 2.5 \cdot 10^{-2}$) qui sont dus respectivement à la maîtrise des fortes aimantations ($4\pi M_s = 1.9$ T) et des largeurs de raie faibles ($\alpha = 0.012$), doublées de la maîtrise de la structure en domaines (*ECW*).
- 3 : pour la première fois également, nous mettons en évidence l'inadéquation entre les facteurs de qualités Q sur lesquels aucun gain significatif (sauf à basse fréquence) n'est observé et les conclusions précédentes. En particulier, il est saisissant de constater que la fréquence pour laquelle on observe un maximum sur Q est anormalement basse (~ 1 GHz) au regard de celle de la résonance ferromagnétique (~ 6 GHz), ce qui disculpe a priori la contribution de la partie imaginaire de μ .
- 4 : en termes applicatifs, les gains observés sur L permettent un redimensionnement des selfs avec un nombre de tours réduit (par exemple 3.5 contre 5.5) pour la même valeur d'inductance qu'au départ. La simulation montre que la compacité globale (écrans magnétiques compris) peut ainsi être améliorée de 25 à 50 % sans dégradation des performances initiales. Nous mettrons également en avant l'efficacité du confinement des champs électromagnétiques avec les écrans magnétiques vis-à-vis des interactions à grande distance, ce qui réduit le *cross talk* entre 2 spirales (Fig. 17) dans une proportion de 3 à 6 dB. A l'inverse, on peut réduire par deux la distance de séparation pour le même *cross talk*. A terme, la compacité globale des circuits RF peut donc être améliorée de 50 % à 60 % avec un dépôt unique de FeHfN ici ou équivalent.

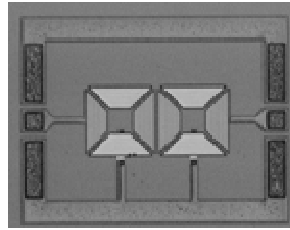


Fig. 17 : exemple de structures utilisées pour la mesure du « cross talk » entre deux selfs

Dans [16-18], nous proposons une explication à la limitation du facteur de qualité avec les spirales. Reprenant la méthode de « segmentation » des écrans magnétiques (Fig. 17) initiées par M. Yamaguchi [19], *au sacrifice du gain sur l'inductance ici*, nous étendrons l'analyse jusqu'à des fréquences de résonance ferromagnétiques très élevées (5.5, 7.7 et 9.5 GHz, respectivement). On constate que L varie bien dans la même proportion que la partie réelle de μ (+ 34% pour $\mu' = 130$, + 19% pour $\mu' = 65$ et + 11% pour $\mu' = 40$, respectivement) mais que Q ne suit pas du tout celle de la partie imaginaire – *retranscrite ici à travers le facteur de qualité intrinsèque du matériau ($Q_{mat} = \mu'/\mu''$)*. Ce sera la preuve de l'existence de pertes en excès (zones grisées sur la figure 18). Nous montrerons dans [17, 18] qu'il s'agit de pertes joules localisées au niveau des conducteurs dont l'origine est purement électromagnétique. Elles sont liées aux effets de *proximité* (dont l'origine est brièvement rappelée sur la figure 19) qui sont propres aux enroulements multi-brins et qui conduisent à une répartition inhomogène du courant dans la section des conducteurs. Ici, l'effet est exacerbé à cause du confinement très important des champs du à la présence du matériau magnétique dans le voisinage immédiat des conducteurs. La dépendance en f^2 de ces pertes est alors responsable de la limitation prématurée de Q indépendamment des performances du matériau magnétique lui même. Les solutions à terme porteront donc en priorité sur l'optimisation du ruban conducteur pour limiter la répartition inhomogène du courant à haute fréquence ou sur un changement plus radical de topologie pour une configuration monobrin (ce que nous verrons au chapitre 3).

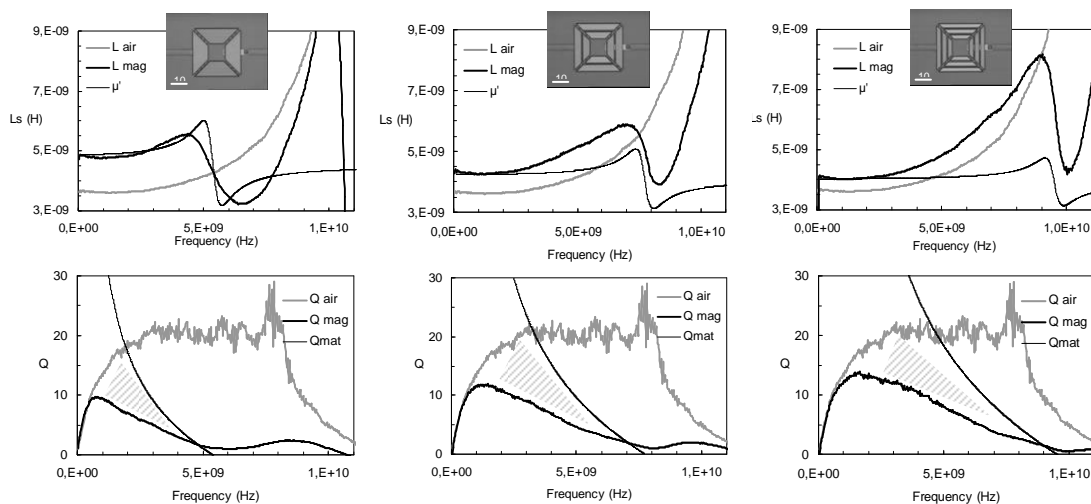


Fig. 18 : illustration des effets de segmentation des écrans magnétiques sur les dépendances en fréquence de l'inductance série et du facteur de qualité d'une self spirale. Note : la partie réelle de la perméabilité correspondante est tracée en superposition à l'inductance ainsi que le facteur de qualité intrinsèque du matériau qui tient compte de la partie imaginaire $Q_{mat} = \mu'/\mu''$. (extrait de [18])

Malgré des résultats de tout premier plan au regard de l'état de l'art, une contribution significative à la compréhension des phénomènes mis en jeu, des démonstrateurs prometteurs fondés sur un procédé de fabrication « pré-industriel » et un potentiel d'optimisation établi (matériau, modélisation, design) le pas vers l'industrie ne sera pas amorcé et les activités menées conjointement avec STMicroelectronics s'arrêteront là. C'est révélateur du caractère traditionnellement conservateur de l'industrie de la microélectronique, au-delà de difficultés techniques ou financières, où l'introduction d'un nouveau matériau dans une ligne de production reste très difficile. S'ajoutent des exigences de maturité, notamment, envers la fiabilité auxquelles nous ne répondons que très partiellement. Seul INTEL Corp. Santa Clara se démarquera en prenant le risque d'aller jusqu'à une ligne pilote avec une version lamellée de CoZrTa [20], c'est la seule exception à ce jour.

7. Alternative aux Fe-N

7.1 Variantes avec FeCo-N

Dans la logique de la course aux fortes aimantations, nous étendrons le principe de « nitruration » du fer aux alliages de FeCo (riche en fer) qui présentent intrinsèquement des valeurs jusqu'à ~ 25 % plus élevées. En effet, nous relevons au préalable des valeurs très encourageantes comprises entre 1.8 et 2.35 T selon le rapport Fe/Co. Mais, nous montrons aussi que ce pré requis ne reste pas significatif en fonction de l'enrichissement en azote nécessaire à l'établissement du caractère doux. L'efficacité de la *nitruration* est très différente selon la composition de l'alliage en raison des différences de structure cristalline. La dissolution de N n'est donc possible que dans $Fe_{50}Co_{50}$ et $Fe_{65}Co_{35}$ dont la maille est bcc avec une texture (110) contrairement à $Co_{90}Fe_{10}$ qui est du type fcc avec une orientation (111).

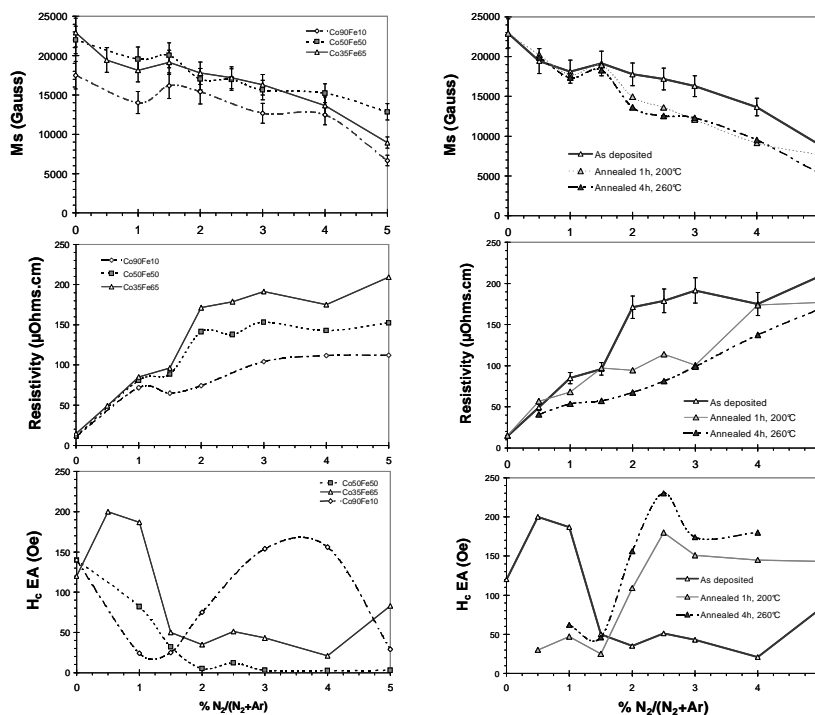


Fig. 19 : dépendances de l'aimantation à saturation, de la résistivité et du champ coercitif en fonction du taux de nitruration pour les films de $Co_{90}Fe_{10}$, $Fe_{50}Co_{50}$ et $Fe_{65}Co_{35}$, respectivement. A droite, effets de recuits à 200°C et 260°C pour les films de $Fe_{65}Co_{35}N$.

La fenêtre de procédé pour les faibles valeurs de H_c n'existe donc véritablement que pour les deux compositions riches en Fe avec un avantage au $Co_{50}Fe_{50}$. On peut trouver un compromis intéressant à partir d'un taux volumique de 2 % en N_2 mais l'aimantation à saturation se réduit vite à compter de 1.6 T. En ce sens, l'alternative au $FeHfN$ n'est plus valable. La raison principale est la formation prématurée de phases $\gamma-Fe_4N$ complexes. Nous montrerons également que la stabilité thermique est très insuffisante. C'est pourquoi, je limite cette parenthèse à ces quelques commentaires qui au demeurant n'ocultent pas la pertinence de ces observations au regard de la littérature [21, 22]. Le point de différenciation reste le mécanisme de *nitruration* et l'obtention de minima sur K_{local} qui restent valables ici.

La seconde série de résultats qui suit concerne les films de $(Fe_{65}Co_{35})_{90}Hf_{10}N$ pour lesquels l'ajout de l'élément Hf s'inspire totalement des films de $Fe_{90}Hf_{10}N$. Le bénéfice de l'élément d'addition se voit immédiatement sur H_c qui atteint des valeurs significativement plus faibles que précédemment et dans le maintien plus favorable de l'aimantation à fort taux de N_2 . On note aussi des valeurs élevées pour la résistivité. Une augmentation significative du paramètre de maille et la disparition des phases $\gamma-Fe_4N$ seront la confirmation d'une limite de solubilité d'azote étendue. Le bénéfice porte également sur la stabilité thermique qui est grandement améliorée. Mais, je souligne avant tout la réduction remarquable de H_c qui passe sous la barre des 1 Oe après recuit. Nous établirons aussi que les caractéristiques dynamiques vont de pair avec ce résultats avec une valeur tout à fait exceptionnelle du coefficient d'amortissement qui descend sous les 10^{-2} (tableau 4 et Fig. 21). L'explication tient à un changement de texture $\langle 110 \rangle$ au profit de $\langle 111 \rangle$ tout en conservant la maille bcc d'origine, ce qui est théoriquement plus favorable car la constante d'anisotropie moyenne ne dépend plus du terme K_1 [23].

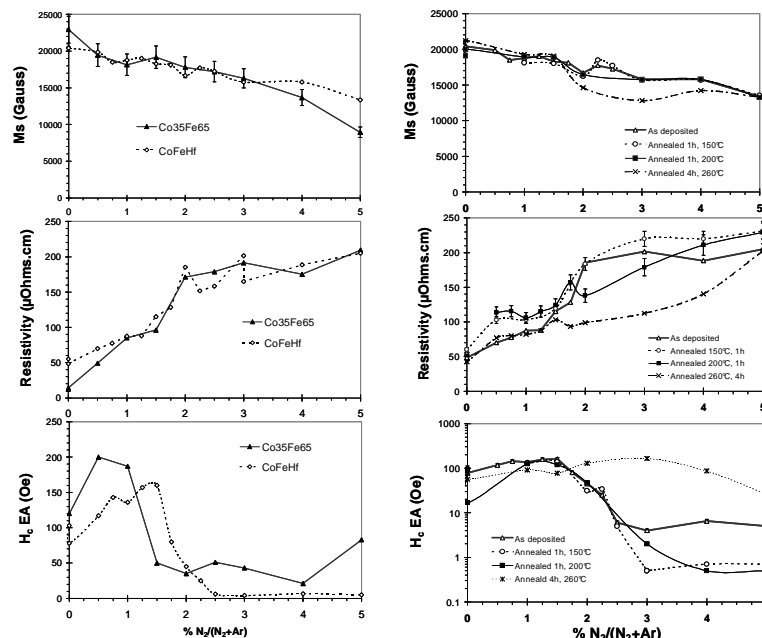


Fig. 20 : dépendances de l'aimantation à saturation, de la résistivité et du champ coercitif en fonction du taux de nituration pour les films $Fe_{65}Co_{35}$ avec et sans addition de Hf (10% en pds). A droite, effets de recuits à 200°C et 260°C.

	$4\pi M_s$ (T)	Hc (Oe)	Hk (Oe)	ρ ($\mu\Omega.cm$)	F_r (GHz)	α
Fe₉₀Hf₁₀-N	1.9	2	20	75	1.8	0012
(Fe₆₅Co₃₅)₉₀Hf₁₀-N	1.6	0.2	47	170	2.6	0.007

Tab.4 : propriétés magnétiques et électriques optimales pour les films de Fe₉₀Hf₁₀-N et de (Fe₆₅Co₃₅)₉₀Hf₁₀-N

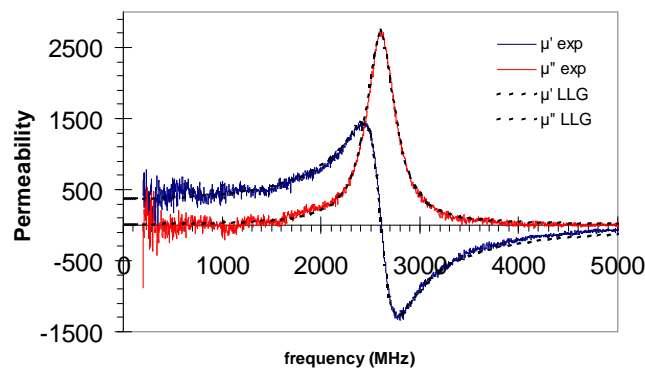


Fig. 21 : Spectres en fréquence de la perméabilité de monocouches de (Fe₆₅Co₃₅)₉₀Hf₁₀-N d'épaisseur de 50 nm. Note : courbes théoriques « macrospin » en traits fins.

Nous sommes ici devant un candidat qui n'est pas l'alternative souhaitée au Fe-N si l'on réduit le critère de décision à l'aimantation à saturation dont la valeur est effectivement en retrait. En ce sens, aller vers un composé ternaire dont la maîtrise est plus délicate n'est pas justifié. En revanche, ce matériau présente indiscutablement des propriétés magnétiques douces exceptionnelles qui en font à ce jour une des meilleures démonstrations du principe d'anisotropie évanescence pour les couches minces nanocristallines. Une étude plus poussée permettrait d'en confirmer l'intérêt sous réserve de répondre aussi aux autres *fondamentaux*.

7.2 Variantes « granulaires » avec Fe-N-O

Jusqu'à présent, la résistivité des films a été vue comme une contrainte modérée avec $\rho \sim 50$ à $100 \mu\Omega.cm$ puisque dans les conditions d'utilisation décrites l'effet de peau à haute fréquence est très minoritaire. Cela n'est pas sans enlever l'intérêt pour les films ferromagnétiques dits « granulaires » très présents dans la littérature japonaise [24, 25]. Je rappelle que par « granulaire », on entend ici des matériaux qui cumulent caractères ferromagnétique et isolant (ou très faiblement conducteur). Il ne s'agit en rien d'oxydes de fer, ce qui pourrait créer une confusion avec les ferrites, puisque l'enjeu est précisément l'obtention d'aimantations à saturation élevées. Ces matériaux appartiennent à une classe plus large de matériaux hétérogènes au sens où ils sont constitués le plus souvent de deux phases. Ici, on retrouve systématiquement la présence d'une phase nanocristalline ferromagnétique (donc dense) mais finement dispersée dans une seconde phase ou matrice qui a la particularité d'être non conductrice ici. J'invite le lecteur à revisiter la littérature mentionnée dans la thèse de S. Couderc [9] qui permet de cerner les enjeux et difficultés de cette approche. Ici, je reviens sur l'intérêt de ces films et propose une synthèse des résultats [26, 27].

Nous extrapolerons par simulation numérique un gain subsidiaire de quelques 10^{aines} de pourcents sur la valeur de l'inductance des selfs spirales (ou sur la compacité à performance égale) lorsque les écrans ferromagnétiques sont placés à proximité voire au contact de l'élément inductif lui-même. Ceci n'était pas permis jusqu'alors - *les distances d'isolation requises étaient de l'ordre de 5 à 10 μm* - à cause du caractère métallique de la couche ferromagnétique qui engendre des capacités parasites importantes en parallèle avec la self. Cela se traduit par une coupure « LC » prématurée et des pertes d'insertion supplémentaires. C'est en général ce que l'on observe dans la grande majorité des travaux dévoilés dans la littérature et c'est d'autant plus vrai pour les spirales où les surfaces en regard peuvent être très grandes. Ainsi, placer des écrans perméables à des distances faibles de la self nécessite une résistivité pour la couche ferromagnétique de l'ordre de 500 à 1000 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$, sans quoi le déplacement de charges dans les écrans magnétiques reste préjudiciable.

Nous avons exploré cette possibilité en partant comme matériau support des films de FeHfN. Ces derniers se prédisposent à cette évolution par leur microstructure qui consiste déjà en une phase nanocristalline ferromagnétique immergée dans une matrice amorphe, mais qui reste ici faiblement résistive ($\sim 100 \mu\Omega\cdot\text{cm}$). C'est de la ségrégation de Hf dans cette matrice, *que nous observerons par analyse STEM/EELS et qui justifie aussi la diminution de la température de Curie [11]*, que viendra l'idée d'une oxydation préférentielle de la matrice grâce à la très grande affinité de cet élément pour l'oxygène. On s'orientera donc vers un procédé doublement réactif s'apparentant à de l'*oxydo-nitruration* sélective qui fera l'objet d'un dépôt de brevet [28].

Il s'agit de maintenir le procédé de *nitruration* de la phase bcc du fer sous flux dilué de N_2 tel qu'on l'a décrit tout en superposant un flux de O_2 également dilué afin d'oxyder préférentiellement les atomes de Hf présents dans la matrice et non ceux de Fe qui constituent la phase ferromagnétique. C'est ce que restituent les figures qui suivent où les séries correspondent à un balayage classique en fonction de la pression partielle de N_2 pour une valeur constante de la pression partielle de O_2 qui augmente graduellement.

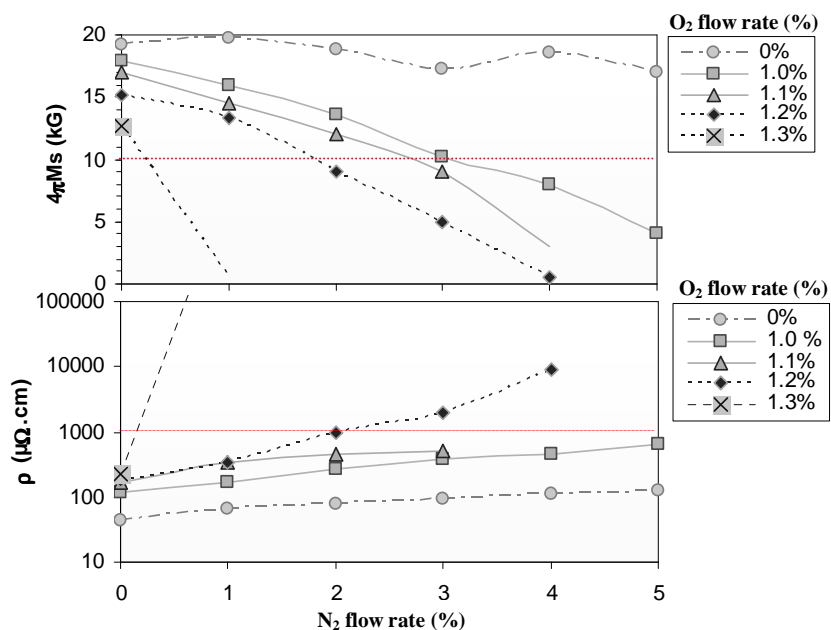


Fig. 22 : dépendances de l'aimantation à saturation et de la résistivité des films granulaires nanocristallins de FeHfNO en fonction du taux de nitruration et pour différents taux constants d'oxydation. (Thèse S. Couderc)

Ce procédé doublement réactif est pertinent car il retarde efficacement l'oxydation massive du fer et permet de s'approcher du compromis recherché entre forte aimantation et résistivité élevée, ce qui constitue le verrou principal au développement de ces matériaux. Par exemple, il est possible de concilier ici $\rho \sim 1000 \mu\Omega.cm$ avec $4\pi Ms \sim 1 T$, ce qui est parmi tout meilleurs résultats de la littérature des *granulaires*. Mais sans propriétés magnétiques douces, cela n'a pas beaucoup d'intérêt. C'est ce que l'on voit sur les figures qui suivent.

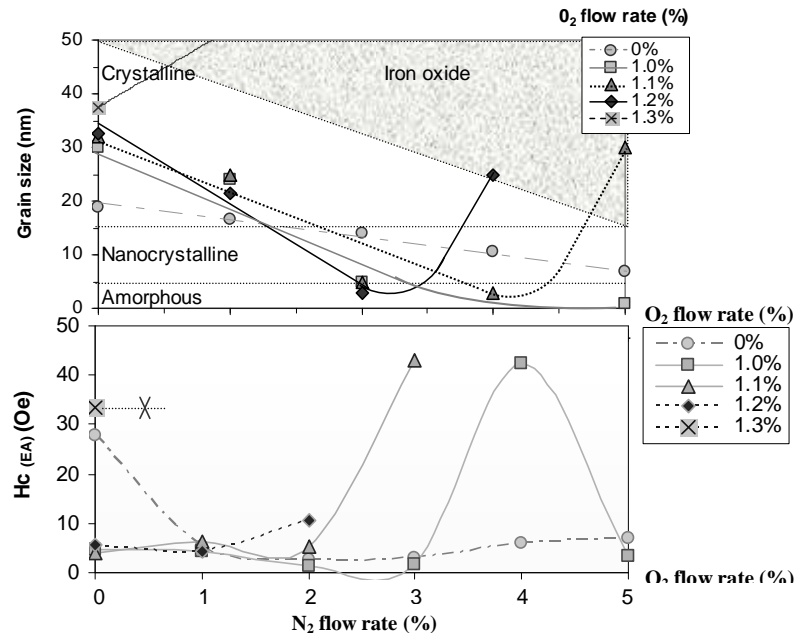


Fig. 23 : dépendances de la taille des grains à saturation et du champ coercitif des films granulaires nanocristallins de FeHfNO en fonction du taux de nitruration et pour différents taux constants d'oxydation. (Thèse S. Couderc)

Les tendances se lisent facilement car le principe de la *nitruration* domine tant que le taux d'oxygène reste modéré ($< 1.3\%$). La réduction de la taille de grains mais aussi l'effet sur le paramètre de maille (non montré ici) ont lieu et conduisent à la diminution du champ coercitif dans des proportions acceptables. La différence avec ce que nous avons vu tient à la modération de ces effets au fur et à mesure que le taux d'oxygène est augmenté, ce qui se traduit par une fenêtre de procédé qui se réduit par le haut. C'est tout simplement la traduction d'une diminution de la limite de solubilité des atomes de N en présence d'oxygène. L'oxygène atomique se dissout également dans la maille du bcc du fer mais de façon minoritaire vis-à-vis de l'oxydation de la matrice. L'extension de la loi de Sieverts à la dissolution de l'oxygène dans le fer liquide explique parfaitement cette évolution. Une fois, la limite de solubilité de l'azote franchie, l'oxygène s'apparie aux atomes de fer et c'est alors l'oxydation massive qui est totalement préjudiciable pour l'aimantation et le caractère doux. L'augmentation très importante de la résistivité que nous observons dans le premier régime n'est liée qu'à l'oxydation préférentielle de la phase intergranulaire riche en élément fortement oxydant dont Hf est représentatif. On s'aperçoit qu'il est nécessaire de relâcher sensiblement le compromis précédent sur ρ et $4\pi Ms$ si l'on veut conserver aussi une valeur adéquate de H_c . C'est le signe d'un début de difficultés mais la plus grande est à venir et concerne le champ d'anisotropie dont l'évolution devient totalement singulière, ce que montre la figure qui suit. Nous devons revenir sur les effets antagonistes de la dissolution de N et O sur la maille bcc du fer pour en comprendre le sens.

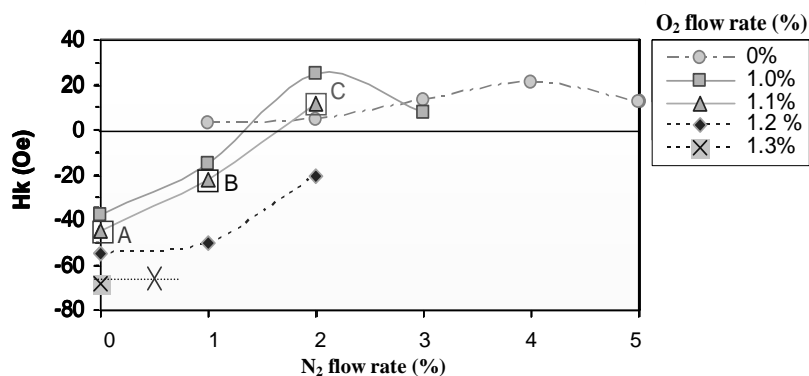


Fig. 23 : dépendances du champ d'anisotropie des films granulaires nanocristallins de FeHfNO en fonction du taux de nitruration et pour différents taux constants d'oxydation. (Thèse S. Couderc)

L'incorporation de N conduit à une dilatation du paramètre de maille et à une réduction de la taille des cristallites ; celle de O conduit aux tendances inverses. C'est très exactement ce que l'on voit sur les figures précédentes pour la première série de points correspondant à $N_2 = 0$. La conséquence la plus visible concerne le champ d'anisotropie H_k qui démarre dans une gamme de valeurs fortement négatives pour augmenter ensuite de façon monotone avec l'incorporation de N en sites octaédriques conformément à ce que nous avons vu. Les valeurs négatives traduisent simplement le fait que la direction de l'anisotropie induite est à 90° de la direction imposée par le champ magnétique au cours du dépôt. Il ya donc bel et bien deux causes à l'anisotropie induite qui coexistent et dont la superposition conduit à un comportement « apparent » singulier tant en statique (cycle d'hystérésis devenant isotrope) qu'en dynamique (double fréquence de résonance selon des directions spatiales différentes). Sans rentrer dans le détail de ces singularités qui sont décrites dans la thèse de S. Couderc, je reviens sur l'explication qui tient à la présence de deux « couches » successives que l'on révélera par TEM. La première à se former mais qui reste minoritaire en présence d'azote et d'oxygène combinés correspond à une fine couche quasi-amorphe de FeHf-O où les atomes d'oxygène sont exclusivement dissous. J'y reviendrai. Le film continue à croître ensuite avec installation de la nanostructure colonnaire que l'on a déjà observée avec incorporation majoritaire d'azote accompagnée d'une faible quantité d'oxygène également en solution solide. Lorsque le ratio O_2/N_2 augmente, la première couche croît au profit de la seconde jusqu'à représenter la quasi-totalité du film entre 1.2 % et 1.3 % par exemple. Mais cette phase s'avère très instable du fait de la très faible solubilité de l'oxygène et une très faible augmentation du débit conduit à une oxydation massive.

Cette phase de FeHf-O est très originale et a demandé une étude en aparté pour en comprendre les particularités. Le procédé que nous utilisons permet de dissoudre les atomes d'oxygène dans la maille du fer et d'observer les effets suivants :

- contraction du paramètre de maille
- augmentation de la taille des cristallites
- instauration d'une anisotropie à 90° de la direction induite

Si les premiers constats peuvent s'expliquer au regard de certains principes de la métallurgie que nous avons revisités pour l'oxygène après l'azote, le dernier tient probablement son origine dans un effet magnétoélastique au niveau de la maille qui n'est pas établi à ce jour.

Nous observerons des propriétés dynamiques intéressantes pour ces films avec des fréquences de résonances comprises entre 1.5 et 2.5 GHz et des coefficients d'amortissement de l'ordre de 0.02 à 0.04. La seule particularité qui mérite d'être mentionnée concerne le film en apparence isotrope obtenu pour $N_2 = 1.8 \%$ et $O_2 = 1.1 \%$ qui présente un double comportement perméable légèrement en dessous de 1 GHz dans deux directions à 90° l'une de l'autre. Cela a présenté un intérêt notable pour les inductances spirales pour lesquelles un seul dépôt, de plus non structuré ici en raison de la forte résistivité ($\rho \sim 500 \mu\Omega.cm$), aurait pu convenir. Cela n'a pas été concrétisé car la difficulté tient au fait que les fréquences de résonances sont significativement différentes et posent un problème d'adaptation des pertes au regard du facteur de qualité de la self. Mais c'est dans le manque de stabilité de ces films que nous trouverons la limitation rédhibitoire comme le montre la figure ci-dessous.

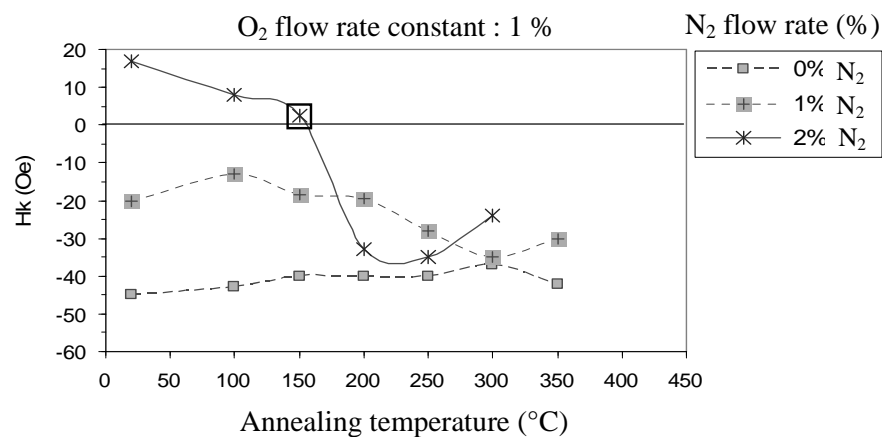


Fig. 24 : dépendances du champ d'anisotropie des films granulaires nanocristallins de FeHfNO en fonction de la température de recuit. Note : le champ magnétique est appliqué parallèlement à la direction initiale de dépôt.

8. Conclusion

Ce chapitre a tenté de montrer qu'une manipulation fine à l'échelle de la maille et des cristallites était accessible à travers la dissolution de l'azote et / ou de l'oxygène atomique dans le fer bcc et ses alliages - *ce que nous pourrions aussi étendre au carbone* [29]. L'obtention d'un caractère doux n'est donc pas uniquement du ressort de la démarche historique inspirée des alliages massifs, revisitée au chapitre 2. Ici, nous avons surtout démontré que l'accès aux fortes aimantations est possible de pair avec des caractéristiques adéquates pour une les hyperfréquences, et inédites pour certaines d'entre elles (fréquences de résonance élevées, coefficient d'amortissement très faibles, résistivités élevées ...). J'ai essayé également de maintenir des orientations qui tiennent dans le périmètre imparté par les *fondamentaux* que j'ai posés initialement afin de borner le développement et l'exploitation de ces films à des fins applicatives. J'ai montré un exemple récent d'application aux inductances planaires des circuits RF (VCO, LNA, filtres ...) pour la téléphonie mobile dont les résultats sont à l'état de l'art [30]. En ce sens les verrous identifiés en fin de chapitre 2 ont été levés. Mais, la principale difficulté que ne doivent pas occulter ces résultats à l'état de l'art des disciplines qui se côtoient ici concerne la stabilité thermique et la fiabilité de ces films. Si les techniques de dépôt des couches minces permettent une nano-ingénierie de plus en plus sophistiquée, le caractère hétérogène grandissant de ces matériaux semble les condamner à terme pour manque de stabilité et de fiabilité. C'est ce que je retiendrai de cette étude, au demeurant exaltante pour tout physicien, au regard de l'échec du passage vers l'industrie que nous avons vécu directement ou indirectement auprès d'autres acteurs principaux du domaine. Le chapitre 3 démarre donc sur une rupture forte fondée sur l'analyse de ce constat.

References

1. M. Takahashi et al., "Soft magnetic properties of Fe-N and Fe-Si-N thin films sputtered in (Ar+N₂) plasma", *IEEE Trans. Mag.*, 26 (5), pp. 1503-1505 (1990).
2. S. Wang, M. H. Kryder, "RF-diode-sputtered iron nitride films for thin-film recording head materials", *J. Appl. Phys.*, 67, (9), pp. 5134-5136, (1990).
3. V.R. Inturi, J. A. Barnard, "The effect of nitrogen on soft magnetism in FeTaN films", *IEEE Trans. Mag.*, 31 (6), pp. 2660-2662, (1995).
4. R. Pehlke, J. F. Elliott, "Solubility of nitrogen in liquid iron alloys », *Trans. Metal. Soc. AIME*, VOL 218, pp. 1088-1100, (1960).
5. B. Viala, M.K. Minor, J. A. Barnard, "Lattice dilation and local anisotropy in nitrogenated iron-based soft magnetic films", *IEEE Trans Mag* , 32, (5), pp. 3506-3508, (1996).
6. E.P. Abrahamson, S.L. Lopata, "The lattice parameters and solubility limits of alpha iron as affected by some binary transition-element additions", *Trans. Metal. Soc. AIME*, VOL 236, pp.76-87 (1966).
7. W.D. Doyle, T.F. Finnegam, "The effect of strain on the susceptibility of polycrystalline Ni-Fe films", *J. Appl. Phys.*, 39, (7), pp. 3355-3364, (1994).
8. B. Viala, S. Couderc, A. S. Royet, P. Ancey, G.Bouche, "Bi-Directional Ferromagnetic Spiral Inductors Using Single Deposition", *IEEE Trans. Mag*, 41, 3544, (2005) – invited
9. "Etude de matériaux ferromagnétiques doux à forte aimantation et à résistivité élevée pour les radio-fréquences – Applications aux inductances spirales planaires pour réduire la surface occupée", S. Couderc, Thèse de l'Université de Limoges, 2006
10. B. Viala, M.K. Minor, J.A. Barnard, "Microstructure and Magnetism in FeTaN Films Deposited in the Nanocrystalline State", *J. Appl. Phys.*, 80, (7), pp. 3941- 3956, (1996).
11. K. Fukamichi, R. J. Gambino, "The Curie temperature and magnetization of Fe-base amorphous binary alloys containing transition metal", *IEEE Trans. Mag.* 17, (6) 1981 pp. 3059-3061.
12. E. Van Riet, W. Klassens, F. Roozeboom, "On the origin of the uniaxial anisotropy in nanocrystalline soft-magnetic materials", *J. Appl. Phys.*, 81, (2), pp. 806-814, (1997).
13. J.C. Cates, C. Alexander, "Theoretical study on magnetostriction in FeTaN films", *J. Appl. Phys.*, 75, (10), pp. 6754-6756, (1994).
14. L. Varga, W.D. Doyle, "Measurements of the crystalline anisotropy sputtered single-crystal FeTaN thin films", *J. Appl. Phys.*, 79, (8), pp.4995-4997, (1996).
15. L. Varga, H. Jiang, T.J. Klemmer, W.D. Doyle, "Magnetostriction constants of (110) oriented epitaxially grown FeTaN thin films", *IEEE Trans. Mag.*, 34, (4), pp. 1441-1443, (1998).
16. B. Viala, "Couches minces ferromagnétiques à haute aimantation pour applications microondes intégrées et moyens de perméamétrie associés", *Proceedings JCMM* (2006) – invited
17. "Investigation of Anomalous Losses in Ferromagnetic Spiral Inductors", B. Viala, A-S. Royet, S. Couderc, *IEEE Trans. Mag*, 41, pp. 3583, (2005)
18. "Fast Analysis of Proximity Effects in Integrated Inductors with High-Permeability Magnetic Material", B. Orlando, A.-S. Royet, B. Viala, *IEEE Trans. Mag*, 42, pp. 3371, (2006)
19. M. Yamaguchi, M. Baba, K. Suezawa, M. Moizumi, K. I. Arai, A. Haga, Y. Shimada, S. Tanabe, K. Itoh, "Improved RF integrated magnetic thin-film inductors by means of micro slits and surface planarization techniques", *IEEE Trans. Mag.*, 36, (5), pp. 3495-3498, (2000).
20. D.S. Gardner et al., "Integrated on-chip inductors using magnetic material", *J. Appl. Phys.*, 103, 07E927, (2008) – invited
21. N.X. Sun, S.X. Wang, T.J. Silva and A.B. Kos, "High frequency behavior and damping of FeCoN-based high-saturation soft magnetic Films", *IEEE Trans. Mag*, Vol. 38, 146, (2002)
22. E. Yu, J. S. Shim, I. Kim, J. Kim, S. H. Han, H. J. Kim, K. H. Kim, M. Yamaguchi "Development of FeCo-based thin films for GHz applications", *IEEE Trans. Mag*, 41, (10), pp. 3259-3261, (2005).
23. A. Hosono, Y. Shimada, "Crystal structure and magnetic softness of FeSi polycrystalline films", *J. Appl. Phys.*, 67 (11), pp. 6981-6990, (1990)

24. S. Ohnuma, H. Fujimori, S. Mitani, T. Masumoto, "High-frequency magnetic properties in metal-nonmetal granular films," J. App. Phys., 79, (8), pp. 5130-5135, (1996) – invited
25. [1] Y. Hayakawa, A. Makino, H. Fujimori, A. Inoue, "High resistive nanocrystalline Fe-M-O (M = Hf, Zr, rare-earth metals) soft magnetic films for high-frequency applications", J. Appl. Phys., 81, (8), pp. 3747 - 3752, (1997).
26. "FeHfN and FeHfNO Soft Magnetic Films for RF Applications", S. Couderc, B. Viala, P. Ancey, G. Bouche and R. Pantel, IEEE Trans. Mag, 41, 3319, (2005)
27. "Improvement of Ferromagnetic Spiral Inductors with using High-Magnetization and High-Resistive FeHf-based Materials", S. Couderc, B. Viala, A.S. Royet, Trans. Mag. Soc. Japan, (2005)
28. "Procédé d'obtention d'un film mince magnétique doux, à forte aimantation et isolant, film et circuit intégré correspondant", B. Viala, S. Couderc, G. Bouche, *N°EN 04 08289*
29. M. Miura, A. Obata, "Crystallography and magnetic behaviour in crystallization process of FeTaC film", IEEE Trans. Mag., 32, (3), pp.1952-1958, (1996)
30. M. Yamaguchi, K.H. Kim, S. Ikeda, " Soft magnetic materials application in the RF range ", JMMM, 304, pp. 208-213, (2006) - invited

Chapitre 4 : Vers l'utilisation du couplage d'échange

1. Introduction
2. Motivations
3. Ajustement des propriétés physiques
4. Dynamique et intégration
5. Réalisations technologiques
6. Conclusion

1. Introduction

Ce chapitre n'est pas seulement une alternative, il est en rupture avec les trois précédents. Nous prenons du recul sur l'idée d'un ferromagnétisme doux appliqué aux hyperfréquences par la seule voie de l'alliage unique. Cette voie impose une tendance à la sophistication grandissante des procédés et des microstructures avec un risque élevé d'incompatibilité à terme avec les exigences de coût et de fiabilité. Ce constat est sévère mais correspond à une réalité de terrain. Je propose ici un éclairage différent du problème.

Avoir posé des *fondamentaux*, outre de ponctuer les tournants successifs de l'état de l'art des films d'alliage unique, permet maintenant de replacer le problème en amont. En effet, le préalable aux hyperfréquences demeure le faible champ coercitif. Or, les parois magnétiques sont la cause originelle du champ coercitif : *1^{er} des fondamentaux*. La notion contraignante d'épaisseur critique est aussi une conséquence des parois : *2^{ème} des fondamentaux*. Parois et domaines pèsent également sur le prix à payer pour conserver une dynamique efficace aux échelles des microsystèmes : *3^{ème} des fondamentaux*. Les chapitres précédents ont dressé une liste presque exhaustive des solutions à l'état de l'art démontrant le potentiel du ferromagnétisme pour les hyperfréquences, mais sans le réaliser pleinement. Les parois magnétiques ont incontestablement conditionnées cette approche - *certes multiple, je n'ai pas parlé de chimie douce par exemple*. Malgré de nouveaux leviers d'ajustement avec le progrès des techniques dans la manipulation fine de la microstructure, il manque des degrés de liberté et les propriétés restent trop dépendantes du seul choix de la composition de l'alliage.

Cette voie est-elle donc condamnée ? Probablement oui, face aux compromis contraignants qu'elle amène. Certains sont les conséquences d'un triangle magique entre H_c , $4\pi M_s$ et ρ , aux tendances antagonistes par définition. Les autres relèvent de la trop grande métastabilité des films liée au caractère de plus en plus hétérogène des microstructures. De plus, la partie la plus valorisable du spectre (3 à 5 GHz actuellement), et qui ne cesse d'augmenter (5 à 10 GHz demain), fait apparaître un besoin pour des valeurs de H_k qui devront être plus grandes ($\times 10$ à 100) - *l'alternative par la structuration des films ayant ses limites*. La microélectronique justifiera alors le coût d'un tel matériau devant le potentiel annoncé de la réduction des surfaces de silicium, mais à deux conditions : qu'il suive les feuilles de routes fixées (ITRS roadmap [1]), ce qui fait actuellement défaut, et fasse preuve de fiabilité (fabrication et usage), ce qui est également défaillant ici.

Une rupture est donc nécessaire. Elle peut passer par le concept plus général d'hétérostructures horizontales - *au sens de multicouches* - en s'inspirant notamment de la spintronique, ce qui permet d'introduire ici les composés antiferromagnétiques. Sur ces considérations, j'en viens aux motivations pour l'utilisation du couplage d'échange pour les hyperfréquences. Je précise que les toutes premières réalisations connexes sont à mettre à l'actif de W.D. Doyle [2], contrairement à ce qui a pu être revendiqué par d'autres.

2. Motivations

Le couplage d'échange entre un matériau ferromagnétique (F) un matériau antiferromagnétique (AF) fait partie des phénomènes physiques remarquables de ces dernières décennies [3]. Il est principalement mis en œuvre en couches minces. Il se traduit par la propriété singulière d'un cycle d'hystérésis ferromagnétique décalé par rapport à l'origine des champs dans une direction dite de « piégeage ».

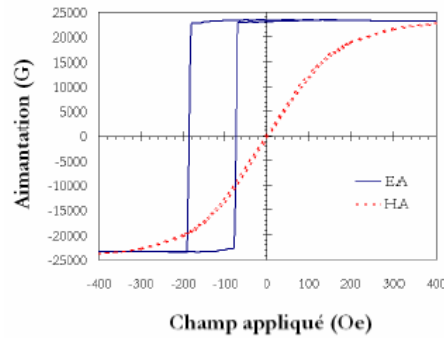


Fig. 1 : cycles d'hystérésis d'une hétérostructure de $Fe_{65}Co_{35}$ couplée par échange avec IrMn. (Thèse Y. Lamy)

On qualifie cette anisotropie d'unidirectionnelle. Il s'agit d'un effet purement interfacial. Le décalage H_{ex} est proportionnel à la densité surfacique d'énergie d'échange J_{ex} - énergie d'origine orbitale stockée à l'interface entre F et AF - et diminue de manière monotone avec l'épaisseur de la couche ferromagnétique e_F .

$$H_{ex} = \frac{J_{ex}}{M_s e_F} \quad \text{Eq. 62}$$

Si cette intensité est suffisante, le cycle est décalé dans son intégralité. La conséquence notable est qu'à champ nul - ce qui est précisément la condition d'utilisation que nous imposons - F est dans un état d'aimantation saturé. En d'autres termes, on réalise très simplement l'état rémanent « idéal » pour F, c'est-à-dire exempt de paroi magnétique.

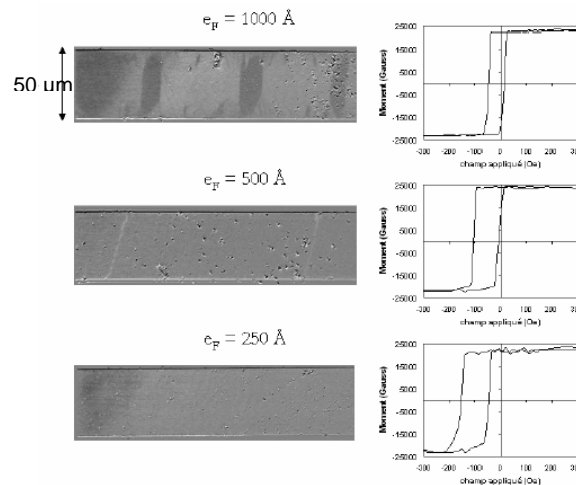


Fig. 2 : structures en domaines (effet Kerr) et cycles d'hystérésis pour une hétérostructure de $Fe_{65}Co_{35}$ couplée par échange avec NiMn sur micromotifs de largeur $50 \mu m$. (Thèse Y. Lamy)

Le couplage d'échange peut donc conduire aux conditions d'uniformité de l'aimantation de la couche F sans préalable sur H_c et sans contrainte sur la composition et la microstructure de l'alliage ferromagnétique. Dès lors, on est conforme à l'hypothèse déterminante du *macrospin* et on le reste jusqu'à des dimensions réduites, y compris sub-microniques. C'est une autre propriété remarquable du couplage d'échange dont l'intensité est peu sensible à la réduction des dimensions. L'exploitation dynamique est donc beaucoup plus immédiate ici parce que cette solution élimine directement fluctuations d'aimantation (au sens d'Hoffmann) et dépendances dimensionnelles. L'idée de rupture se confirme via des performances dynamiques (Fig. 3) comparables aux meilleures que l'on ait observées au chapitre 3.

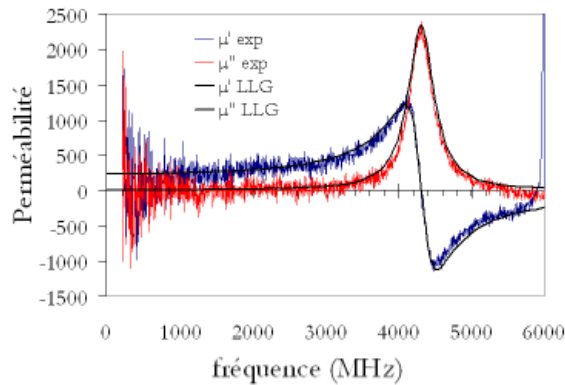


Fig. 3 : exemple de spectres de perméabilité pour une hétérostructure de Cu(5nm)/Co₃₅Fe₆₅(50nm)/NiMn(50nm) avec un coefficient d'amortissement α de 0.007. (Thèse Y. Lamy)

Le couplage d'échange permet donc d'éliminer deux des trois *fondamentaux* mais reste *a priori* associé à une notion de faible épaisseur pour F, ce qui est vrai dans les dispositifs magnétorésistifs. L'originalité de notre travail porte sur une topologie peu explorée où la couche F bénéficie d'un couplage à ses deux interfaces avec deux couches AF. Cela permet de « doubler » la densité d'énergie interfaciale et donc les épaisseurs utiles pour F (typiquement jusqu'à 100 nm). La restriction sur l'épaisseur n'est donc guère plus pénalisante que pour les films d'alliage unique. En somme, on peut considérer que les trois *fondamentaux* sont éliminés. De plus, le nombre de degrés de liberté du système double avec le choix des épaisseurs et des résistivités respectives de F et de AF.

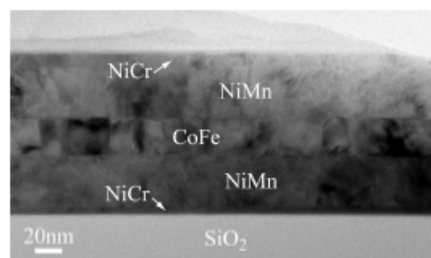


Fig. 4 : image TEM d'une coupe transverse de la structure Sandwich NiMn/Fe₆₅Co₃₅/NiMn. Note : NiCr (ici) ou Ru sont utilisés comme sous couches de croissance et de protection contre l'oxydation. (Thèse Y. Lamy)

J'en viens aux motivations plus spécifiques pour les hyperfréquences. Les exigences se réduisent donc aux deux grandeurs essentielles qui contrôlent la résonance ferromagnétique F_r : l'aimantation à saturation $4\pi M_s$ et le champ d'anisotropie induit H_k - *contre trois précédemment avec H_c* . J'ajoute l'indispensable notion de stabilité thermique. L'utilisation du couplage d'échange avec AF permet de résoudre l'indépendance de ces deux grandeurs, à l'opposé du principe d'unicité de l'alliage. La rupture avec l'état de l'art tient à cette séparation. Le couplage d'échange fait également parti des exceptions qui ont bénéficié d'un transfert *extraordinairement* rapide vers le milieu industriel. On le retrouve aujourd'hui dans la quasi-intégralité des dispositifs magnétorésistifs pour l'enregistrement, les capteurs et les mémoires. Il bénéficie donc d'une maturité, en termes de coût, de fiabilité et d'investissements, qui peut se transférer à la microélectronique. Y recourir pour les applications RF relève donc d'une stratégie rationnelle dans une perspective industrielle.

Aimantation à saturation $> 2 T$

La première motivation porte sur la valeur de $4\pi M_s$. Sans préalable à H_c , le choix des compositions s'élargit. Le risque de dilution de l'aimantation par un élément d'addition est

éliminé. On peut donc revenir au composé binaire $Fe_{65}Co_{35}$ associé à une valeur quasi ultime avec ~ 2.4 T. Ce choix est désormais indépendant du champ coercitif ($H_c \sim 100$ Oe) et du coefficient d'amortissement dynamique ($\alpha \sim 10^{-1}$) intrinsèquement inappropriés. L'essentiel des résultats repris dans ce chapitre concernent donc des hétérostructures avec $Fe_{65}Co_{35}$. Je discuterai plus loin du choix de AF (ci-dessous exemple avec IrMn).

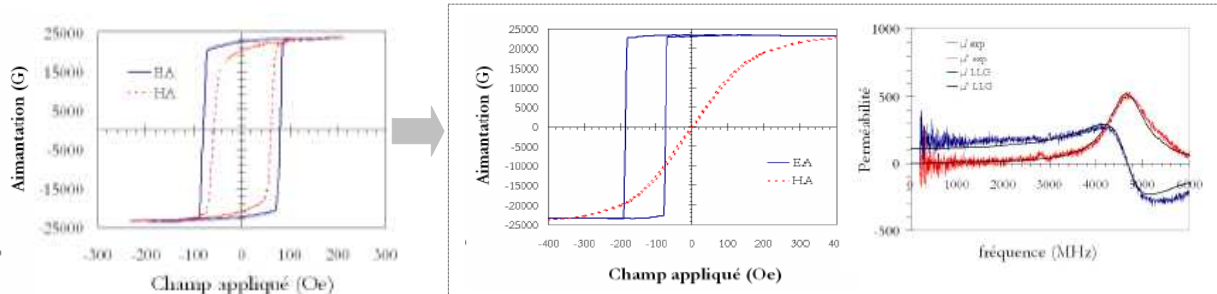


Fig. 3 : comparaison des cycles d'hystérésis entre une couche mince de $Fe_{65}Co_{35}$ et une hétérostructure de $IrMn(8nm)/Fe_{65}Co_{35}(25nm)/IrMn(8nm)$ avec spectres de perméabilité associés (Thèse Y. Lamy)

Champ d'anisotropie induit > 100 Oe

La deuxième motivation concerne le champ d'anisotropie induit H_k que l'on peut au premier ordre assimiler à H_{ex} . Il devient ici une grandeur indépendante ajustable en fonction de l'inverse de e_F (Eq. 61). De plus, son amplitude est proportionnelle à l'énergie *extraordinairement* élevée mise en jeu dans le couplage d'échange, ce qui permet des valeurs jusqu'alors inaccessibles ($H_k > 100$ Oe). Le couplage d'échange apparaît alors comme la solution intrinsèque à l'*autopolarisation* des matériaux ferromagnétiques pour le haut de la bande spectrale - *pour reprendre la terminologie historique fondée sur des solutions purement extrinsèques*. C'est donc un verrou qui se lève pour les très hautes fréquences.

Fiabilité et tenue thermique $> 200^\circ C$

Le choix pour le couplage a l'avantage d'anticiper sur la tenue thermique si critique aux films d'alliage unique, en allant chercher les solutions établies pour le *data storage* où conditions de fabrication et d'utilisation sont agressives. L'essor des MRAMs avec jonctions tunnels à barrière MgO conduit, par exemple, à une stabilisation des électrodes magnétiques en termes de risque d'électromigration jusqu'à au moins $400^\circ C$. Or, ceux sont précisément ces familles de matériaux (F et AF) que nous reprenons ici. On se place donc a priori au dessus des limites des films d'alliage unique ($\sim 200^\circ C$). La tenue thermique de ces hétérostructures tient au fait que la très grande majorité des couches AF doivent subir un refroidissement sous champ - *c'est la notion de « field cooling »* - à partir d'une température dite de « blocage » T_b qui peut aller jusqu'à $400^\circ C$. Par défaut, la stabilité thermique postérieure à ce recuit sera figée jusqu'à au moins cette température. Le couplage d'échange est aussi thermiquement dépendant au sens où J_{ex} diminue à l'approche de T_b . Le choix de la couche AF peut être déterminant ici, comme on le voit sur la figure 4. En revanche, la plupart des spécifications d'usage sont inférieures à $80^\circ C$ et l'impact sur le fonctionnement est négligeable. J'y reviens plus loin.

Je termine cette partie par le positionnement sur notre feuille de route avec un positionnement sur l'axe vertical désormais quasiment maximal. Celui sur l'axe des résistivités est à consolider car l'absence d'élément d'addition limite aux faibles valeurs caractéristiques des éléments F et de leurs composés binaires (~ 10 à $30 \mu\Omega.cm$). En revanche, le degré de liberté supplémentaire offert par le choix de la couche AF peut venir en compensation car les alliages AF sont intrinsèquement plus résistifs (~ 70 à $100 \mu\Omega.cm$), voire isolants s'il s'agit d'oxydes (NiO par exemple).

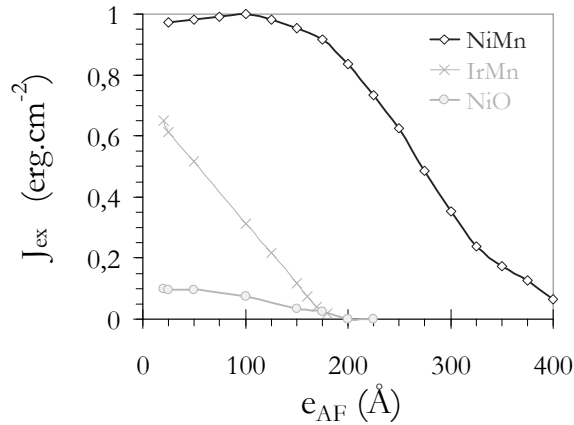


Fig. 4 : évolution de la densité d'énergie d'échange interfaciale J_{ex} en fonction de la température pour l'hétérostructure NiMn/FeCo/NiMn avec $Co_{90}Fe_{10}$ et $Fe_{65}Co_{35}$, respectivement. (Thèse Y. Lamy)

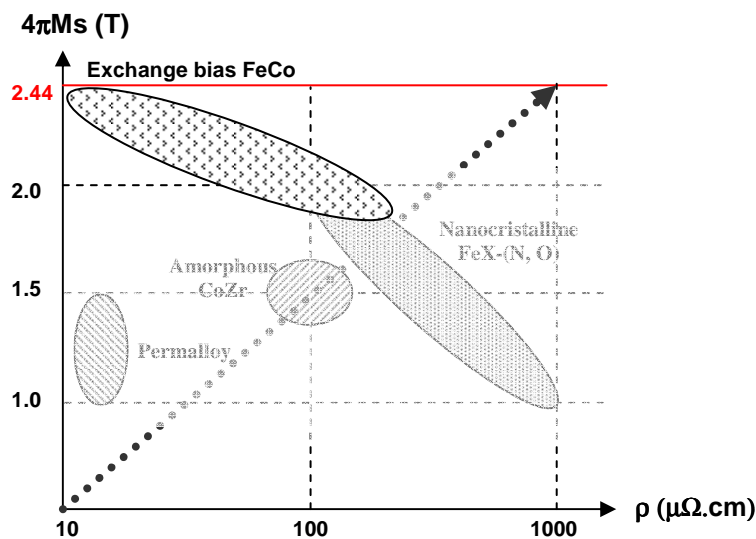


Fig.5 : feuille de route pour les couches ferromagnétiques douces pour la RF, d'après nos travaux.

3. Ajustement des propriétés physiques

3.1 Maximiser le couplage aux interfaces

Le potentiel d'ajustement des propriétés est fortement dépendant de la nature de la couche AF. Il sera d'autant plus élevé que la valeur de J_{ex} sera grande. Le choix de la couche AF est donc crucial. La figure 6 est un résumé de la mise au point préalable des conditions de dépôt et de recuit (voir [4]) de trois matériaux AF représentatifs de l'état de l'art : $Ni_{50}Mn_{50}$, $Ir_{50}Mn_{50}$ et NiO. Je limite la description des résultats à la topologie AF/ $Fe_{65}Co_{35}$ /AF qui permet de se démarquer de la littérature classique du couplage F/AF.

La figure 6 rappelle d'abord que J_{ex} dépend grandement de e_{AF} . Il existe effectivement une épaisseur minimale propre à chaque AF en dessous de laquelle le couplage d'échange est inefficace. Dans la pratique, l'épaisseur utile est choisie dans le début de la plage où l'on observe une valeur maximale de J_{ex} , soit ici : 8nm pour IrMn, 20 nm pour NiO et 50 nm pour NiMn. On confirme des valeurs cohérentes avec celles de l'état de l'art. Les résultats montrent un avantage incontestable à NiMn avec une valeur exceptionnellement élevée : $J_{ex} = 1.1 \text{ erg.cm}^{-2}$. Cette valeur s'explique par le fait que l'on cumule le couplage aux deux

interfaces - on vérifie dans [4] que les valeurs respectives de J_{ex} pour les topologies Top et Bottom correspondantes s'additionnent effectivement. En revanche, c'est IrMn qui présente l'épaisseur utile la plus faible avec 8 nm, ce qui lui confèrera un avantage envers la dilution de l'aimantation effective vis-à-vis de l'épaisseur totale de l'hétérostructure. J'y reviens plus loin. L'oxyde de nickel semble loin derrière mais c'est oublier son caractère isolant qui peut s'avérer avantageux pour les applications.

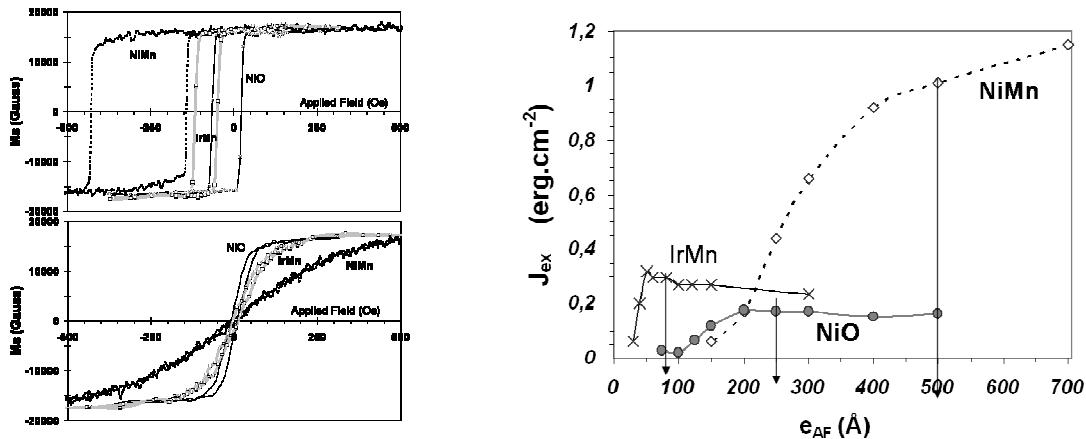


Fig. 6 : cycles d'hystérésis et évolution de la densité d'énergie d'échange interfaciale J_{ex} en fonction de l'épaisseur de la couche AF pour une hétérostructure type AF/ $Fe_{65}Co_{35}$ (25nm)/AF avec AF = NiMn, IrMn et NiO, respectivement. Note : les cycles d'hystérésis correspondent aux valeurs optimales de e_{AF} . (Thèse Y. Lamy)

Les différences observées ici sont imputables aux symétries cristallines et aux ordres chimiques qui sont très différents d'un alliage à l'autre. NiMn présente une structure tétragonale face centrée (tfc) avec un ordre chimique L_10 qui devient majoritaire seulement après recuit (250 à 300°C). Cette phase est à l'origine des propriétés antiferromagnétiques supérieures de NiMn dont J_{ex} et T_b qui est parmi les plus élevées (jusqu'à 400°C). IrMn est plus complexe parce qu'il possède naturellement deux phases difficilement séparables : l'une ordonnée L_12 qui est en théorie très favorable, l'autre désordonnée γ -IrMn qui moyenne les propriétés à la baisse dont J_{ex} et T_b qui est limitée à 180°C. NiO est à part car il s'agit d'un oxyde. Comme pour tous les oxydes AF, la valeur de J_{ex} est nettement en retrait devant celles des alliages de Mn. En revanche, c'est l'oxyde qui possède la plus grande valeur de T_b (~200°C). Sa structure est de type cfc avec des plans $\langle 111 \rangle$ qui sont AF. C'est là le point commun à tous ces matériaux. L'obtention de la texture $\langle 111 \rangle$ est en ce sens déterminante. Le recours à des sous couches de texturation est systématique. On retiendra ici plus particulièrement : NiCr, Ru ou Cu, qui présentent tous une croissance naturelle $\langle 111 \rangle$.

Le choix de l'alliage constituant la couche F est moins critique envers J_{ex} et T_b . L'influence est du second ordre et fonction de la propension de F à croître préférentiellement $\langle 111 \rangle$. Dans le cas des alliages de FeCo, l'augmentation de la teneur en Fe s'accompagne par un changement de la texture $\langle 111 \rangle$ au profit de $\langle 110 \rangle$, ce qui est défavorable à J_{ex} mais dans une moindre mesure (10 %) vis-à-vis du gain observé sur $4\pi M_s$ (30 %).

3.2 Régler les propriétés via e_F

Les graphes de la figure 7 illustrent l'ajustement de H_{ex} et de H_k , qui découlent de l'optimisation de J_{ex} . Ils mettent en exergue le rôle et les valeurs utiles de l'épaisseur de la couche ferromagnétique e_F au sein de l'hétérostructure AF/ $Fe_{65}Co_{35}$ /AF.

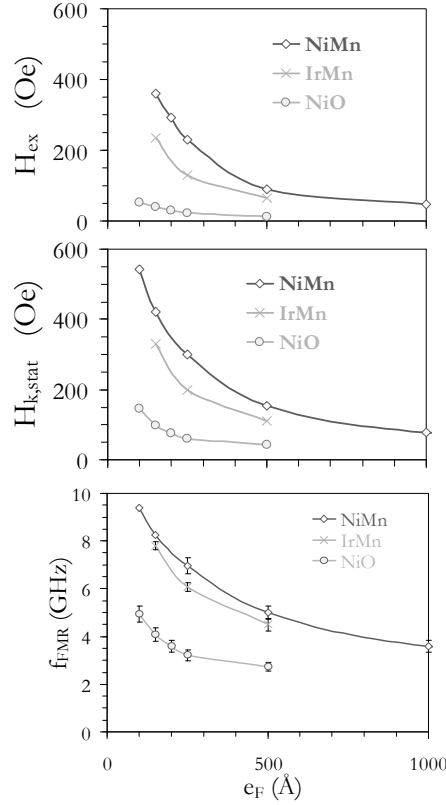


Fig. 7: ajustement du champ d'échange H_{ex} et du champ d'anisotropie H_k et estimations de la fréquence de résonance ferromagnétique correspondante en fonction de l'épaisseur de la couche F pour une hétérostructure type $AF/Fe_{65}Co_{35}/AF$ avec $NiMn(50nm)$, $IrMn(8nm)$ et $NiO(25nm)$, respectivement. (Thèse Y. Lamy)

L'ajustement consiste à réduire e_F pour décaler la fréquence de résonance ferromagnétique vers le haut, le niveau de perméabilité étant intrinsèquement *maximal* du fait du choix de $Fe_{65}Co_{35}$. La topologie choisie cumulant le couplage aux deux interfaces est favorable au sens de permettre d'ajuster finement H_{ex} et par conséquent H_k , tout en conservant des valeurs *utiles* pour e_F . Cet ajustement se fait en toute logique au prorata des énergies mises en jeu dans chaque système. C'est donc avec $NiMn$ que le potentiel de réglage est le plus grand, conduisant à des valeurs exceptionnelles pour H_k qui peuvent dépasser 500 Oe. Dans tous les autres cas, on est facilement au dessus de 100 Oe, ce qui positionne indiscutablement cette approche en rupture avec l'état de l'art conventionnel. La suite est une estimation des valeurs théoriques correspondantes pour la fréquence de résonance ferromagnétique. On confirme qu'une extension très significative de la bande spectrale est possible jusqu'à typiquement 10 GHz, voire 20 GHz si l'on accepte une réduction de l'épaisseur utile à moins de 10 nm. Ces prévisions valables pour des films non structurés ou « *pleine tranche* » supplantent définitivement celles des films d'alliage unique.

3.3 Origine de H_k

Si la démarche consistant à ajuster les propriétés via e_F semble acquise, j'ouvre ici une parenthèse sur H_k et reviens aux détails de la figure 7. On peut remarquer que les tendances sur H_{ex} et H_k sont similaires mais que les valeurs respectives diffèrent avec plus ou moins d'écart selon la nature de AF . C'est une conséquence connue du couplage d'échange qui est l'élargissement du cycle ferromagnétique dans la direction de piégeage. Ceci se traduit par une augmentation du champ coercitif H_c^{EA} avec une tendance en e_F^{-1} que l'on confirme ici.

On reportera dans [4] que l'effet est plus marqué pour NiM (Fig. 10) que NiO et IrMn pour lesquels les augmentations de H_c^{EA} sont ~ 3 et 5 fois moins importantes, respectivement.

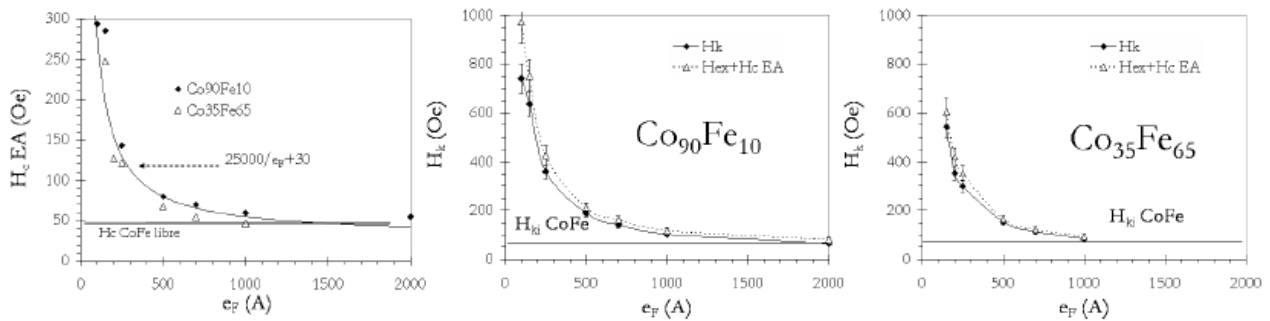


Fig. 8 : à gauche, variations du champ du champ coercitif H_c^{EA} en fonction de l'épaisseur de la couche F pour une hétérostructure type NiMn(50nm)/Fe₆₅Co₃₅/NiMn(50nm) et à droite variations correspondantes du champ d'anisotropie effectif H_k et de la somme $H_{ex} + H_c^{EA}$. (Thèse Y. Lamy)

H_k n'est donc pas une simple traduction de l'anisotropie unidirectionnelle H_{ex} mais celle d'une réalité plus complexe. Les graphes ci-dessus montrent qu'il faut ajouter H_c^{EA} à H_{ex} pour expliquer les valeurs expérimentales de H_k , ce que nous rapprocherons des considérations théoriques initiées par Fujiwara [9]. L'augmentation de H_c^{EA} est supposée traduire des processus de retournement d'aimantation irréversibles supplémentaires. L'hypothèse repose sur une population minoritaire de grains AF dont la constante d'anisotropie est insuffisante pour participer collectivement au couplage d'échange. Ces grains (ou amas de grains) peuvent voir leurs spins d'interface *entraînés* lors du retournement des spins de la couche F sous l'action du champ extérieur. Ils participent ainsi à l'augmentation de H_c^{EA} mais aussi à l'anisotropie uniaxiale locale parce qu'ils retardent physiquement le changement de direction de l'aimantation de la couche F. Cette contribution implicite est incluse dans la mesure de H_k et n'affecte pas a priori les prévisions de la fréquence de résonance ferromagnétique.

Cette partie se conclue donc favorablement quant aux perspectives dynamiques qu'il est permis de prévoir. Le concept d'une hétérostructure associant le composé binaire Fe₆₅Co₃₅ à aimantation « ultime » avec le principe de l'anisotropie unidirectionnelle, cumulée ici aux deux interfaces, semble probant. Ceci n'exclue pas le potentiel intermédiaire des configurations médianes du type AF/F et F/AF ou encore F/AF/F. La suite couvre les aspects liés à la dynamique et à l'intégration dont on attend une validation définitive du concept.

4. Dynamique et intégration

Dynamique et intégration cohabitent beaucoup plus naturellement ici puisque les contraintes liées à la réduction des dimensions ont été levées (3^{ème} des *fondamentaux*). Toutefois, on peut émettre une réserve quant à l'état rémanent de la couche F qui doit être parfaitement saturé.

4.1 Limites de l'exploitation dynamique

On peut traduire cette réserve par la condition suivante : $H_{ex} > H_c^{EA}$. Or, ces deux grandeurs dépendent respectivement de e_F et e_{AF} . A l'instar de l'*Edge Curling Wall* pour les films d'alliage unique laminés, on peut établir des *diagrammes de phase* en fonction du couple (e_F , e_{AF}). Les transitions de phases sont spécifiques à chaque système comme le montre la figure 9. Pour NiMn, on voit que le rapport critique e_F / e_{AF} est plus favorable pour

$\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ que $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$. Le choix de l'AF importe aussi via la dépendance de H_c^{EA} avec e_F^{-1} et pointe IrMn comme le candidat le plus favorable. C'est l'association $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ / IrMn qui réalise le meilleur compromis au regard de cette condition [4].

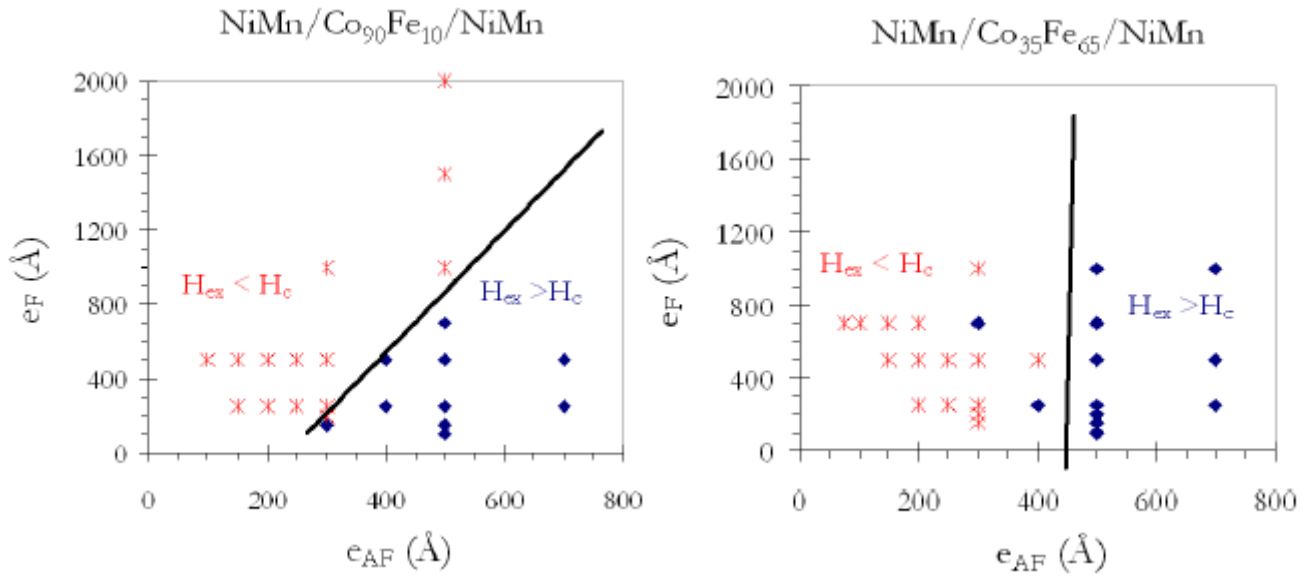


Fig. 9 : exemples de diagramme de phase de l'état rémanent en fonction des épaisseurs respectives des couches AF et F pour l'hétérostructure type $\text{NiMn}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}/\text{NiMn}$. (Thèse Y. Lamy)

Cette condition étant respectée, les caractérisations dynamiques révèlent des comportements classiquement *Lorentzien*, avec des coefficients d'amortissement effectifs tout à fait comparables à ceux des films d'alliage unique ($\alpha \sim 0.02$). L'originalité se trouve dans les valeurs des fréquences de résonance qui sont rapidement hors d'atteinte (> 6 GHz) avec les techniques conventionnelles de mesures, par monopire notamment. Je montre ici trois spectres représentatifs adaptés grossièrement à 5 GHz pour rester dans les limites de l'observation expérimentale.

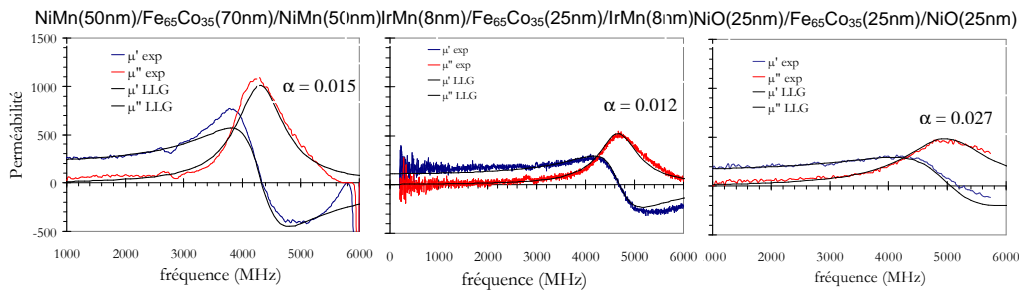


Fig. 10 : exemples représentatifs de spectres de perméabilité pour les hétérostructure $\text{AF}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}/\text{AF}$ adaptées à $F_r \sim 5$ GHz avec $\text{NiMn}(50\text{nm})$, $\text{IrMn}(8\text{nm})$ et $\text{NiO}(25\text{nm})$, respectivement. (Thèse Y. Lamy)

A l'inverse si cette condition n'est pas remplie, les comportements dynamiques ne sont plus *Lorentzien* et l'extraction d'un coefficient d'amortissement n'a plus de sens - on parle donc de largeur de raie à mi-hauteur. La figure suivante résume les dépendances observées avec la réduction de e_F sur les principales grandeurs dynamiques expérimentales.

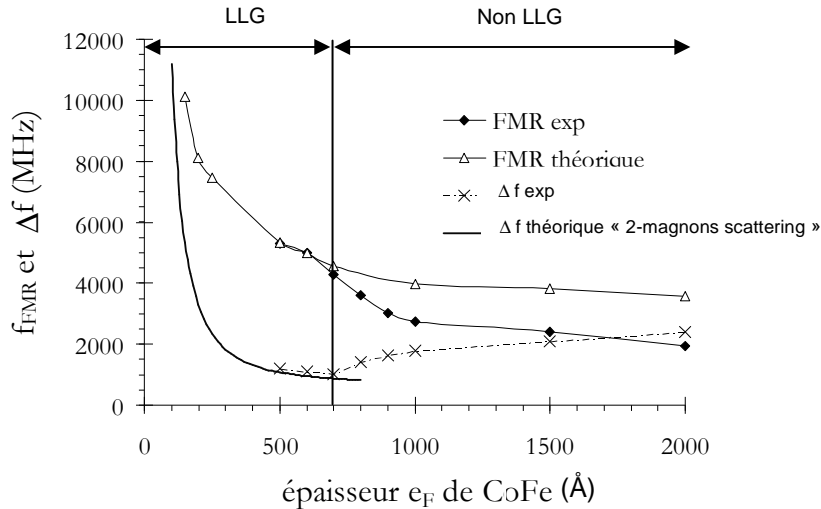


Fig. 11 : dépendances de la fréquence de résonance ferromagnétique et de la largeur à mi-hauteur en fonction de l'épaisseur de la couche F pour les hétérostructure NiMn(50nm)/Fe₆₅Co₃₅/NiMn(50nm). (Thèse Y. Lamy)

La conséquence d'un état rémanent non parfaitement saturé (ici pour $e_F > 700 \text{ \AA}$) se traduit par un élargissement du pic de résonance, à mettre au crédit des inhomogénéités résiduelles de l'aimantation (Fig.2). A l'opposé, les raies s'affinent dès que l'on réduit e_F avec l'augmentation de l'anisotropie unidirectionnelle pour rejoindre les valeurs théoriques prédites par le modèle de Rezende [10]. Ce dernier décrit que l'altération de la qualité morphologique des interfaces F/AF peut lever la dégénérescence d'ondes de spins au sein de la couche F et conduire à un élargissement significatif des largeurs de raie proportionnellement à e_F^{-2} . Les données expérimentales semblent se raccorder fidèlement à celles du modèle pour les épaisseurs les plus fines mais la confrontation se heurte très vite à la limite de la technique de mesure en raison d'un décalage trop important des fréquences de résonance. Ce modèle pourrait pointer l'une des limites à l'utilisation du couplage d'échange pour le haut de la bande spectrale ($> 5 \text{ GHz}$) où largeurs de raies ou coefficient d'amortissement seraient prohibitifs. En revanche, on peut penser que le modèle surestime d'au moins un facteur « 2 » les effets parce qu'il est établi pour une interface unique et nous en cumulons deux ici. De plus, une valeur exceptionnellement faible à l'égard de ce modèle a été confirmée ($\alpha \sim 0.07$ ou $\Delta F \sim 500 \text{ MHz}$) précisément dans le cas d'une interface F/AF unique (Fig.3). Si la qualité des interfaces reste déterminante, on peut disculper les hétérostructures AF/F/AF d'une limitation rédhibitoire qui serait fondée uniquement sur l'argument de ce modèle.

4.2 Anisotropies unidirectionnelles statique et dynamique

La figure 11 soulève une autre question qui porte sur le désaccord entre valeurs expérimentales et calculées de la fréquence de résonance ferromagnétique. L'origine de ce désaccord est pointée sur la figure 12 où résultats quasi-statiques (VSM) et dynamiques (biased-FMR) associés à l'excursion du cycle d'hystérésis dans la direction de piégeage sont superposés. Pour plus de clarté, j'utilise ici les labels $H_{\text{ex,stat}}$ et $H_{\text{ex,dyn}}$.

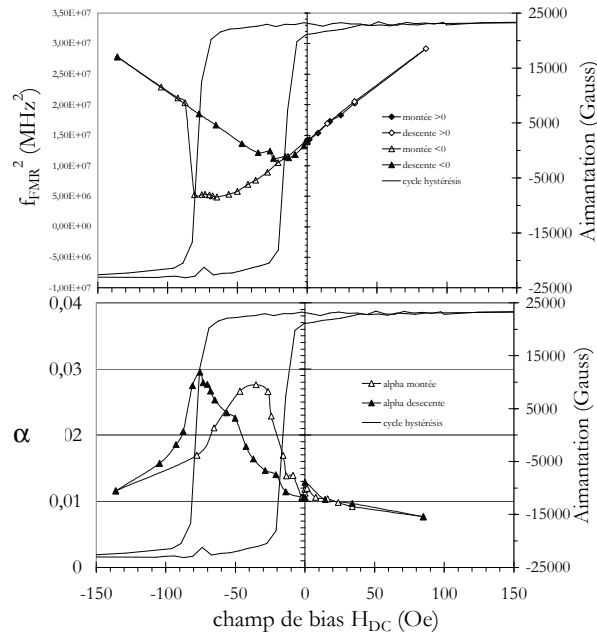


Fig. 12 : exemple d'excursion du cycle d'hystérésis dans la direction de piégeage par VSM et biased-FMR pour l'hétérostructure type NiMn(50nm)/Fe₆₅Co₃₅(70nm)/NiMn(50nm). (Thèse Y. Lamy)

Il en ressort que les valeurs de $H_{ex,dyn}$ sont systématiquement plus petites que celles de $H_{ex,stat}$ de 20 à 40 %, ce qui explique les écarts observés sur la fréquence de résonance sur la figure 11. Comme déjà observé dans [11], $H_{ex,dyn}$ est plus proche de la branche de retournement la moins décalée en champ, ce qui confirme que le retournement de l'aimantation dans les structures à couplage d'échange est fortement asymétrique [12]. Le passage par chaque branche s'accompagne d'une augmentation significative de α liée aux phénomènes dissipatifs de nucléation et croissance des domaines de renversement.

4.3 Dépendances avec la température

S'intéresser à la dynamique d'hétérostructures avec couplage d'échange impose d'étudier avec attention les dépendances avec la température parce que les contributions propres aux matériaux AF que l'on vient d'aborder ici peuvent être découplées à l'approche de la température de blocage T_b . Je propose d'illustrer ce propos avec les figures 13 et 14 sur la base de résultats originaux présentés dans [13-15]. Les caractérisations dynamiques ont été effectuées sur le banc monopire 6 GHz contrôlé en température du CEA Le Ripault. La première série de figures montre l'impact de la température de mesure sur les propriétés statiques et dynamiques des hétérostructures à base de NiMn. Le décalage des fréquences de résonances vers le bas du spectre du au relâchement du piégeage avec la température est attendu. Il s'accompagne aussi d'une augmentation de l'amortissement qui peut s'expliquer par le fait que la condition sur l'état parfaitement saturé de la couche F ($H_{ex} > H_c^{EA}$) ne se vérifie plus pour une valeur de température qui est propre à chaque système. La lecture de ces graphes permet d'établir le lien immédiat qui existe entre les comportements statiques et dynamiques dont la cause est la dépendance intrinsèque de J_{ex} avec la température, qui diffère pour chaque AF (voir Fig. 4). Par ailleurs, je fais remarquer que l'effet de la température sur l'aimantation à saturation de la couche F reste totalement marginale ici, du fait des températures de Curie très élevées ($\sim 1200^\circ\text{C}$) pour les composés binaires de FeCo.

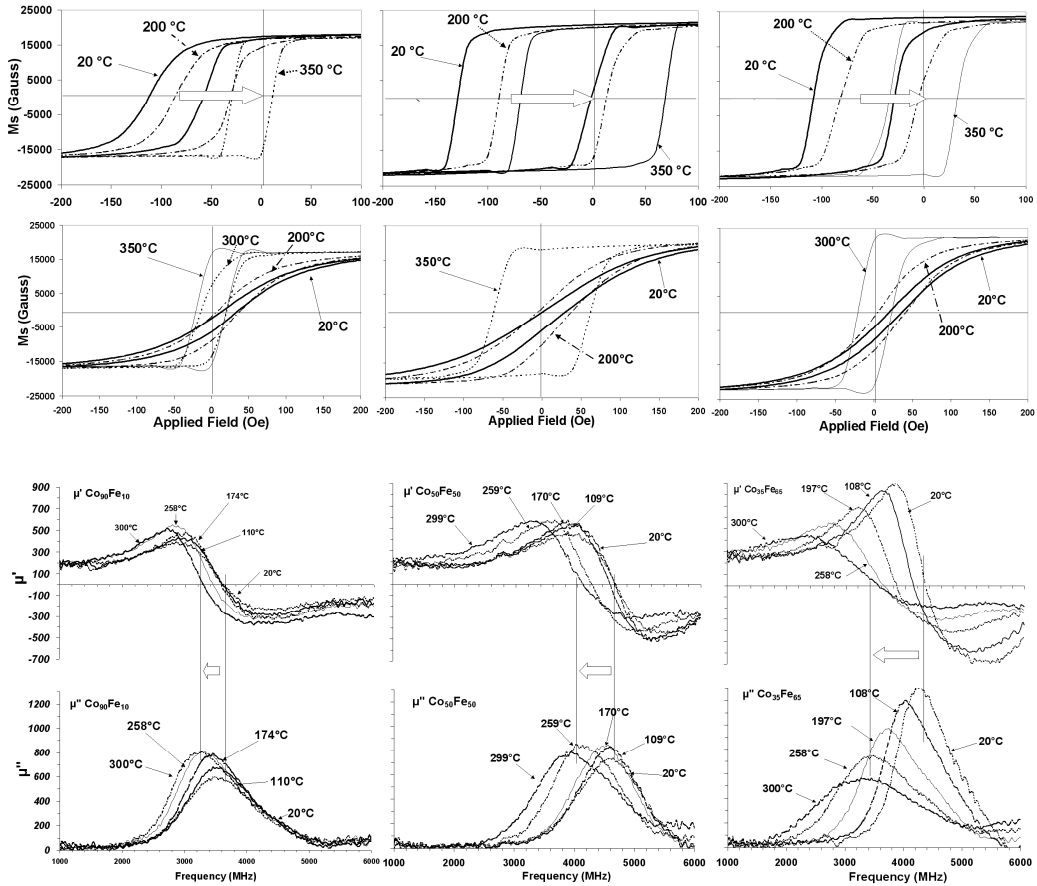


Fig. 13 : cycles d'hystérésis et spectres de perméabilité en fonction de la température de mesure pour l'hétérostructure type NiMn(50nm)/Fe₆₅Co₃₅(70nm)/NiMn(50nm). (Thèse Y. Lamy)

Les constatations précédentes nous conduiront à élargir la comparaison aux trois compositions d'AF. C'est ce que montre la seconde série de graphes.

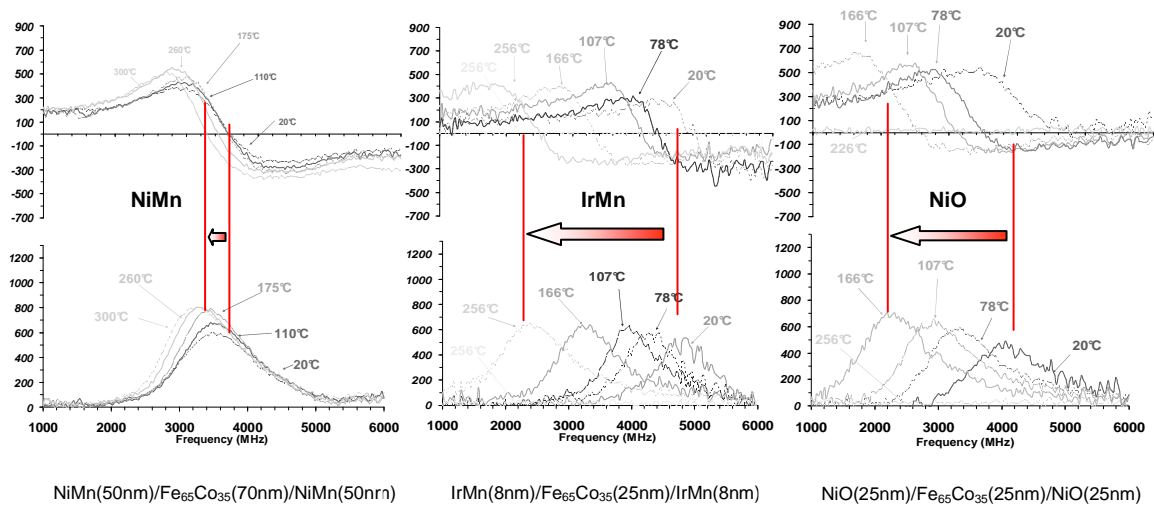


Fig. 14 : spectres de perméabilité en fonction de la température de mesure pour les hétérostructures types AF/Fe₆₅Co₃₅/AF avec NiMn(50nm), IrMn(8nm) et NiO(25nm), respectivement. (Thèse Y. Lamy)

On voit clairement que l'amplitude du décalage des fréquences de résonance vers le bas du spectre diffère significativement selon la composition de l'AF. Elle semble directement imputable à la température de blocage T_b (380°C, 220°C et 180°C pour NiMn, NiO et IrMn, respectivement), mais aussi à la manière dont J_{ex} diminue avec la température. Cela suggère ici également des contributions possibles propres aux AF. Afin d'analyser ces possibilités, une troisième série de graphes offre une vision synthétique de l'évolution de l'ensemble des grandeurs statiques et dynamiques correspondantes et fait ressortir des tendances rarement observées dans leur intégralité.

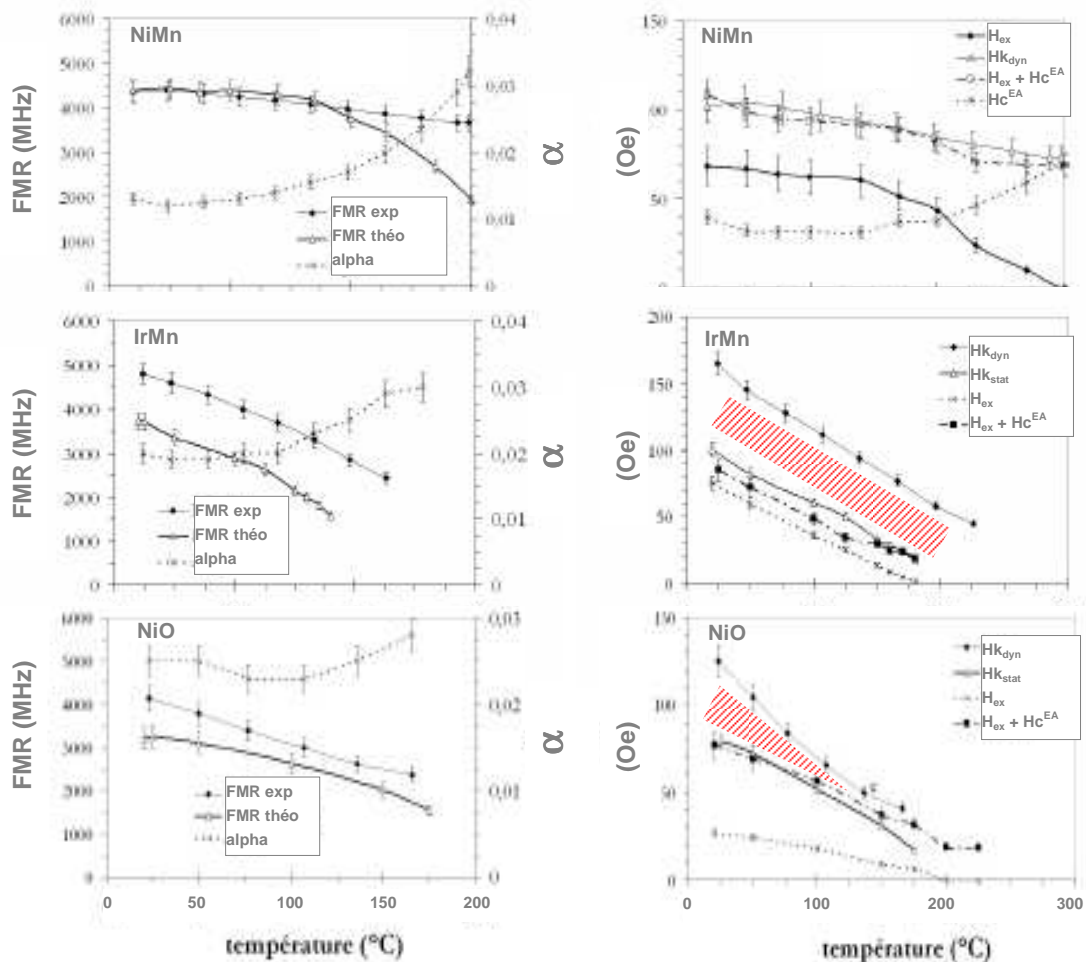


Fig. 15 : évolutions en fonction de la température de mesure des grandeurs statiques et dynamiques pour les hétérostructures AF/ $Fe_{65}Co_{35}$ /AF avec NiMn(50nm), IrMn(8nm) et NiO(25nm), respectivement. (Thèse Y. Lamy)

La lecture des graphes de gauche indique que l'écart entre valeurs calculées et mesurées des fréquences de résonance suit des évolutions différentes avec la température. Ici, nous pouvons établir une comparaison plus directe entre les valeurs des champs d'anisotropie effectifs statique et dynamique que j'appelle Hk_{stat} et Hk_{dyn} , par cohérence avec les labels précédents. Je précise que Hk_{dyn} est extrait de la mesure de la fréquence de résonance.

Dans le cas de NiMn, cet écart est modéré à l'ambiante mais s'accroît très significativement à l'approche de la température de blocage. De façon surprenante, on continue à observer des fréquences de résonance élevées alors que le couplage unidirectionnel a quasiment disparu comme en témoignent les valeurs résiduelles de H_{ex} très faibles. L'explication tient au fait que le calcul utilise une estimation de Hk par la pente à l'origine, en raison de la dégradation du cycle difficile lorsque la température augmente. Or, ceci n'anticipe pas l'augmentation très

importante de Hc^{EA} que l'on observe sur l'axe facile. Maintenant, si l'on intègre les valeurs de Hc^{EA} pour les hautes températures avec $Hk_{stat} = Hex_{stat} + Hc^{EA}$, on explique parfaitement la tendance réellement observée sur la fréquence de résonance. De plus, comme on le voit sur le graphe de droite, les courbes pour Hk_{stat} et Hk_{dyn} se superposent, ce qui ne justifie pas le recours à une autre contribution ici. Le bon comportement dynamique en température avec NiMn s'explique donc par une compensation de la diminution de H_{ex} avec la température par une augmentation de Hc_{EA} , dans des proportions équivalentes.

Le cas de IrMn est fondamentalement différent. La tendance plus marquée de la diminution des fréquences de résonance avec l'augmentation de la température est ici cohérente avec une baisse simultanée de Hex_{stat} et de Hc^{EA} . Par contre, l'écart entre fréquences de résonance mesurées et estimées est important dès l'ambiante et reste pratiquement constant jusqu'au voisinage de la température de blocage. Cette observation vaut aussi pour Hk_{stat} et Hk_{dyn} sur le graphe de droite. Pour retrouver les valeurs expérimentales de la fréquence de résonance à haute température, on doit recourir à une contribution dynamique supplémentaire (zone hachurée en rouge) habituellement appelée Hk_{rot} . Le comportement dynamique en température avec IrMn est donc moins favorable qu'avec NiMn à cause de la diminution combinée Hex_{stat} et de Hc^{EA} , cependant les valeurs restent avantageusement décalées vers le haut en raison d'une contribution à l'anisotropie dynamique rotatoire qui est ici peu sensible à la température.

Le cas de NiO est similaire à IrMn mais souffre du désavantage de voir la contribution à l'anisotropie dynamique rotatoire, également présente ici, diminuer avec la température. C'est donc celui des trois AF qui présente le moins bon compromis.

Nous pouvons conclure cette partie en mettant en parallèle les deux contributions excédentaires identifiées et associées au comportement singulier de la couche AF, l'un observable dans les conditions quasi-statiques - *et à fort champ* : Hc^{EA} , l'autre en régime dynamique - *et à faible champ* : Hk_{rot} .

$$Hk_{stat} = Hex_{stat} + Hc^{EA} \quad \text{Eq. 63}$$

$$Hk_{dyn} = Hex_{dyn} + Hk_{rot} \quad \text{Eq. 64}$$

Une explication plus argumentée des ces effets dépasse le cadre de ce manuscrit et reste une préoccupation d'actualité [15-20]. Il est certain que l'origine est à trouver au sein de la couche AF et qu'elle est associée à son caractère polycristallin, mais, les mécanismes restent à préciser. Si la contribution perceptible en régime statique est vraisemblablement associée au retournement forcé d'une minorité de grains AF, celle relevant du régime dynamique pourrait faire appel à un mécanisme collectif plus proche du « trainage » [17] et mettre en jeu les joints de grains dans la couche AF. Si l'on revient sur l'objectif applicatif, on peut conclure quant à la très bonne tenue en température des hétérostructures à base de NiMn. Avec IrM et de NiO, la plus grande sensibilité à la température est un inconvénient. Cependant, il convient d'en limiter la portée dans la mesure où l'identification des phénomènes mis en jeu permet une anticipation qui autorise une évaluation des performances en fonction de spécifications d'usage. En somme, le caractère intrinsèquement dépendant du couplage d'échange avec la température n'est pas spécialement pénalisant et permet à ces hétérostructures de rivaliser avec les meilleurs films d'alliage unique (Fig.15 Chap.2). On retiendra comme condition nécessaire une température de blocage élevée, mais elle peut ne pas être suffisante au regard des contributions singulières de chaque AF. L'avantage notable porte ici sur la stabilité thermique (de 300 à 400°C) due à la grande homogénéité des microstructures qui tranche avec celle des films d'alliage unique. De plus, il existe une possibilité de restaurer a posteriori les propriétés magnétiques par « *field cooling* » à partir de 200 à 300°C, si nécessaire.

4.4 L'effet de dilution

En préalable aux applications, je discute de l'effet de dilution qui prend une importance particulière ici du fait la présence imposée de la couche AF. Je reviens donc aux considérations sur la limite de Snoek (Eq. 41) présentées dans les préambules du chapitre 1. La finalité étant de décliner l'hétérostructure élémentaire en plusieurs itérations du type AF/(F/AF) x_n , le taux de remplissage en matière ferromagnétique (tx^F) est déterminant. La figure 16 démontre qu'il n'y a pas de difficulté à répliquer l'interface élémentaire F/AF jusqu'à 10 fois sans modification notable des propriétés - *du moins du point de vue statique*.

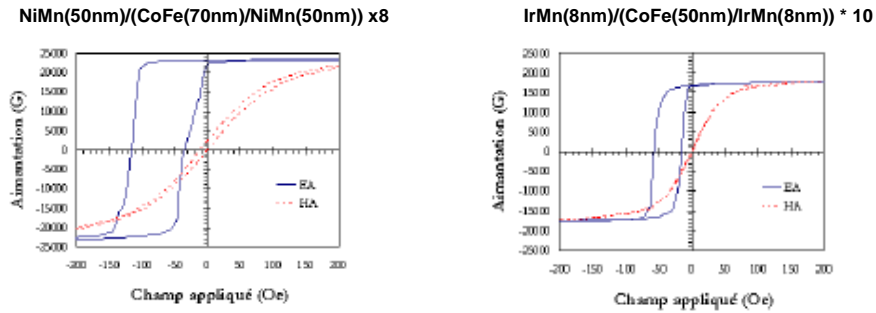


Fig. 16 : exemple de cycles d'hystérésis d'hétérostructures multiples AF/(F/AF) x_n . (Thèse Y. Lamy)

La figure 17 décrit les niveaux de perméabilités quasi-statiques μ_{dc} en fonction des fréquences de résonances F_r , pondérées par le taux de remplissage tx^F qui s'écrit :

$$tx^F = \frac{n \times e_F}{n \times e_F + (n+1) \times e_{AF}} \quad \text{Eq. 65}$$

Je précise que tx^F est calculé pour chaque valeur de F_r qui correspond elle-même à une valeur spécifique de e_F (Fig. 7). En revanche, e_{AF} est maintenu constant. Les calculs prennent en compte les caractéristiques de chaque AF et en particulier leurs épaisseurs spécifiques ($e_{AF}^{IrMn} = 8 \text{ nm}$, $e_{AF}^{NiO} = 25 \text{ nm}$ et $e_{AF}^{NiMn} = 50 \text{ nm}$).

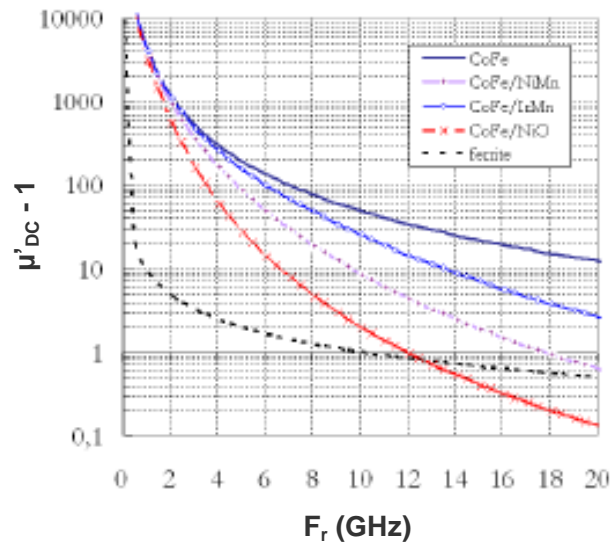


Fig.17 : loi de Snoek étendue aux hétérostructures AF/(F/AF) x_n pour $n \geq 10$ avec NiMn(50nm), IrMn(8nm) et NiO(25nm), respectivement. (Thèse Y. Lamy).

Les conclusions ici sont assez spontanées quant à la dilution du caractère perméable qui devient flagrant dans la deuxième moitié de la bande des fréquences de résonance. A l'extrême (~ 20 GHz), les épaisseurs ferromagnétiques sont si faibles qu'elles ne justifient plus le recours à ces hétérostructures au regard des performances équivalentes de ferrites au baryum par exemple. A l'inverse, dans la première moitié de la bande, les niveaux *extraordinaires* de perméabilité annoncés restent accessibles malgré la prise en compte de la dilution. Les effets sont à nuancer selon les empilements. Idéalement, l'AF devrait présenter une épaisseur spécifique aussi faible que celle de IrMn (8 nm), une densité surfacique d'énergie d'échange aussi grande que NiMn (1 erg.cm⁻²) et un caractère isolant comme NiO, ce qui laisse ouvert un certain nombre de perspectives à explorer. A ce stade-ci, la réalité est un compromis des trois et le meilleur choix tendrait à porter sur IrMn. Mais, ce dernier reste un AF complexe (bi-phasique), à la tenue en température modérée (T_b=180°C) et au comportement intrinsèque encore peu compris (contribution importante de H_{k,rot}). A ce stade, un choix raisonné incite plutôt à retenir NiMn pour sa robustesse globale.

En revanche, ceci ne doit pas occulter que le comportement dynamique réel est rapidement pénalisé par le cumul des épaisseurs des couches qui restent essentiellement métalliques et les spectres de perméabilité tendent à s'écraser sous l'effet des courants induits (Fig.16). On restera donc limité dans la pratique à 2 ou 3 itérations, soit une épaisseur ferromagnétique équivalente de 0.2 μm typiquement. Le recours à NiO peut sembler s'imposer ici mais il est limité à une bande spectrale plutôt basse où il offre une alternative comparable à celle des meilleurs films d'alliage unique.

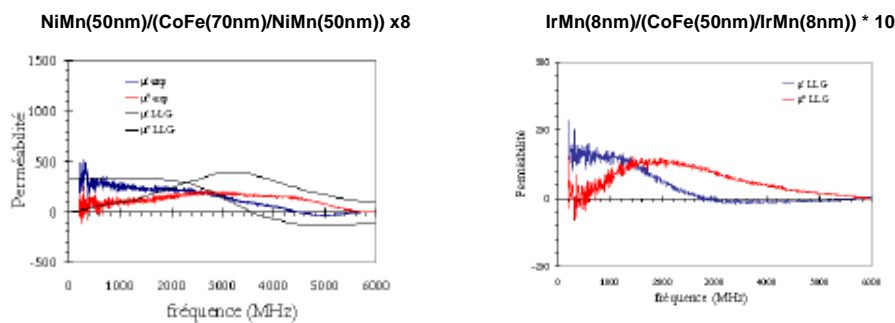


Fig. 16 : exemple représentatifs de spectres de perméabilité d'hétérostructures multiples. (Thèse Y. Lamy)

4.5 Un premier bilan

On peut dresser un premier bilan par un tableau de synthèse permettant une comparaison rapide des avantages et inconvénients y compris de plages d'exploitation possibles pour les hyperfréquences. Le lecteur peut y trouver les principales directions à suivre pour aller vers des études plus systématiques.

	Exchange coupling energy	Critical thickness	Filling ratio $x = e_f/e_{AF}$	Resistivity ($\mu\Omega \cdot \text{cm}$)	FMR (GHz)	Damping	Linewidth (MHz)	Annealing	T _b (°C)
NiMn	1 erg.cm ⁻²	500 Å	$x < 1$	175	4 → 10	0.018	950	Yes	~400
IrMn	0.3 erg.cm ⁻²	80 Å	$x > 2$	275	3 → 6	0.023	1280	No	180
NiO	0.15 erg.cm ⁻²	250 Å	$0.4 < x < 2$	$< 10^8$	2 → 5	0.024	1438	No	200

Tab. 1 : principales caractéristiques et plages d'exploitation pour les hyperfréquences des hétérostructures AF/(Fe₆₅Co₃₅/AF)*xn* à très forte aimantation (2.4 T). (Thèse Y. Lamy)

5. Réalisations technologiques

Comme pour les précédents chapitres, je termine celui-ci par quelques exemples appliqués. Il s'agit de « premières » concernant l'intégration de ce type d'hétérostructures pour les hyperfréquences, au regard de l'état de l'art du moment. L'intérêt pour le développement de matériaux fortement perméables et autopolarisés rejoint ici celui pour des circuits magnétiques fermés à haute efficacité dont le concept a été revu au chapitre 2, mais pour les basses fréquences. En effet, le ferromagnétisme appliqué aux hyperfréquences se heurtera indubitablement à la faible *perméance* intrinsèque des couches minces, c'est-à-dire au produit de la perméabilité par l'épaisseur. Pour répondre à cela, on doit réussir à associer deux exigences *ultimes* dans le haut de la bande spectrale : l'une sur le niveau de perméabilité et l'autre sur le degré de confinement des champs électromagnétiques. C'est le verrou que l'on s'est proposé de lever avec l'idée ambitieuse de réaliser des circuits magnétiques fermés hautement perméables à plus de 5 GHz.

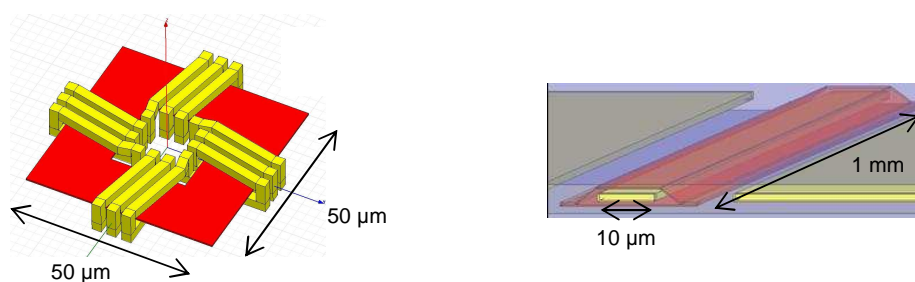


Fig. 17 : exemples de topologies avec circuits magnétiques fermés appliqués aux hyperfréquences : self toroïdale sur cadre fermé (à gauche) et guide d'onde coplanaire à brin central enrobé (à droite). Note : le circuit magnétique en rouge est réalisé à partir d'hétérostructures de type AF/F/AF.

5.1 Inductances RF toroïdales

Transposer le concept des inductances toroïdales intégrées des basses fréquences aux hyperfréquences est un véritable *challenge*. Il répond à un besoin important en RF d'isoler les composants de puissance (*power amplifiers*) du reste du circuit à cause des interférences électromagnétiques (EMI) et radio fréquences (RFI). C'est le rôle des selfs de découplage (*choke coils*) qui se limitent aujourd'hui à des composants discrets (selfs à tores de ferrite). Les plus bas niveaux d'inductances visés sont typiquement de quelques 10^{aines} de nH ce que les selfs spirales, grandes consommatrices de surfaces de silicium, ne peuvent pas réaliser. La question d'une solution intégrée offrant compacité, performances au GHz et très faible radiation électromagnétique reste donc posée. Nous y apporterons une réponse préliminaire fondée sur le concept de selfs toroïdales RF ultra compacts utilisant les hétérostructures précédentes (figure 17, à gauche). A partir des caractéristiques de la structure type IrMn(8nm)/[Fe₆₅Co₃₅(50nm)/IrMn(8nm)]_{x10}, on estimera une densité surfacique record de $1 \mu\text{H}\cdot\text{mm}^{-2}$, soit plus d'un ordre de grandeur que celle des selfs spirales. Pour être concret, cela correspond à une inductance de 3 nH pour un empattement de seulement $50 \times 50 \mu\text{m}^2$. De plus, les pertes affectant le facteur de qualité (Q) se réduisent ici aux pertes gyromagnétiques ici (pas d'effet de *proximité*). Ainsi, l'accès aux valeurs très élevées des fréquences de résonance (10 GHz) garantit les facteurs de qualité jusqu'à 5 GHz au moins, avec un potentiel d'optimisation important qui dépend au premier ordre du coefficient d'amortissement α du matériau. A notre connaissance, l'annonce de telles performances [22] reste unique à ce jour dans ce domaine d'application.

5.2 Guides d'ondes coplanaires à brin « enrobé »

L'idée d'un environnement électromagnétique ultra confiné s'applique également aux guides d'onde. La topologie CPW (*Coplanar Wave Guides*) est la plus courante pour les applications intégrées. On s'y intéressera très tôt [23] dans l'idée d'une alternative aux selfs spirales car cette topologie s'adapte naturellement aux conditions d'excitation des couches minces ferromagnétiques uniaxiales, comme illustré sur la figure 18. En revanche, ces structures sont limitées intrinsèquement à des densités linéiques d'inductance très faibles (typiquement $< 0.5 \text{ nH.mm}^{-1}$). Nous pousserons alors l'idée d'un enrobage complet du ruban central par le matériau magnétique lui-même (Fig.17-18, à droite). Bien sûr, ceci n'a de sens que si la fréquence de résonance ferromagnétique intrinsèque au matériau est élevée : verrou que l'on levé ici. Cette architecture originale fait l'objet d'un brevet [24].

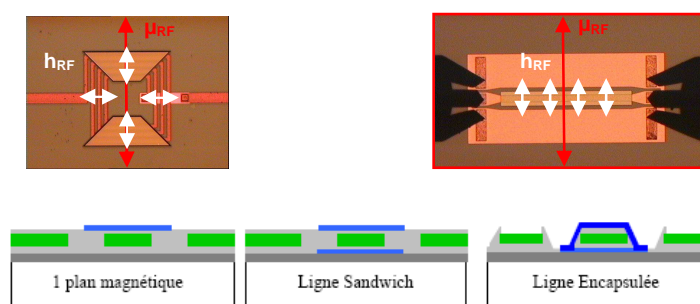


Fig. 18 : illustrations des conditions d'excitation planaire pour une spirale et une ligne CPW et schéma d'intégration des couches ferromagnétiques (Top, Sandwich et Encapsulée)

5.2.1 Inductances « méandres »

L'intérêt d'une telle structure est de rendre possible la réalisation de selfs de type « méandre » [25]. Habituellement, cette configuration est exclue parce qu'elle engendre des mutuelles inter-brins négatives donc destructrices en termes de valeur d'inductance - *la différence avec les spirales s'explique à cause du sens de propagation du courant qui est opposé dans deux brins adjacents*. Le haut degré de confinement d'un brin avec la structure enrobée lève ce verrou et rendra possible la réalisation d'une telle inductance avec des valeurs tout à fait comparables à celles des spirales. Deux avantages notables s'en dégagent : l'absence d'effet de *proximité* sur la répartition du courant dynamique (et donc des pertes en excès associées) et une utilisation beaucoup plus efficace de la perméabilité dynamique grâce à un schéma d'excitation optimal ici. Pour s'en convaincre, il suffit d'observer sur le graphe central de la figure 19 la concordance quasi-parfaite entre les parties réelle de l'impédance et de la perméabilité du matériau et des facteurs de qualités correspondants - *on notera que le maximum de Q résulte au premier ordre de la somme des inverses de Q_{air} et Q_{mag}* . On n'observe pas d'équivalent avec les spirales (voir Chap. 3). Comme dans le cas du tore fermé, les valeurs maximales de Q dépendent étroitement du coefficient α du matériau, reportant le poids de l'optimisation sur ce seul paramètre. Les inductances « méandres » à brins encapsulés utilisant les hétérostructures à couplage d'échange montrent donc un potentiel qui supplante de très loin celui des selfs spirales à écrans magnétiques, à compacité équivalente.

5.2.2 Filtres « coupe bande »

Le deuxième intérêt à cette topologie est de pouvoir exploiter dans des conditions optimales l'effet d'absorption à la résonance gyromagnétique. Or, l'élément que j'ai laissé de côté jusqu'à présent concerne les pertes magnétiques à la résonance μ''_{max} (voir Eq.40) dont

les valeurs sont exceptionnellement élevées ici du fait d'une dépendance au cube avec l'aimantation à saturation. Nous réaliserons des filtres élémentaires « coupe bande » très performants comme on le voit sur la figure 19 (graphe de droite). L'originalité des résultats concernent les bandes spectrales adressées (~ 10 GHz) et le niveau d'absorption réalisé (99% du signal pour un brin enrobé de longueur de 2 mm). Ces performances rivalisent avec un état de l'art (*noise suppressor*) particulièrement étoffé au Japon [26].

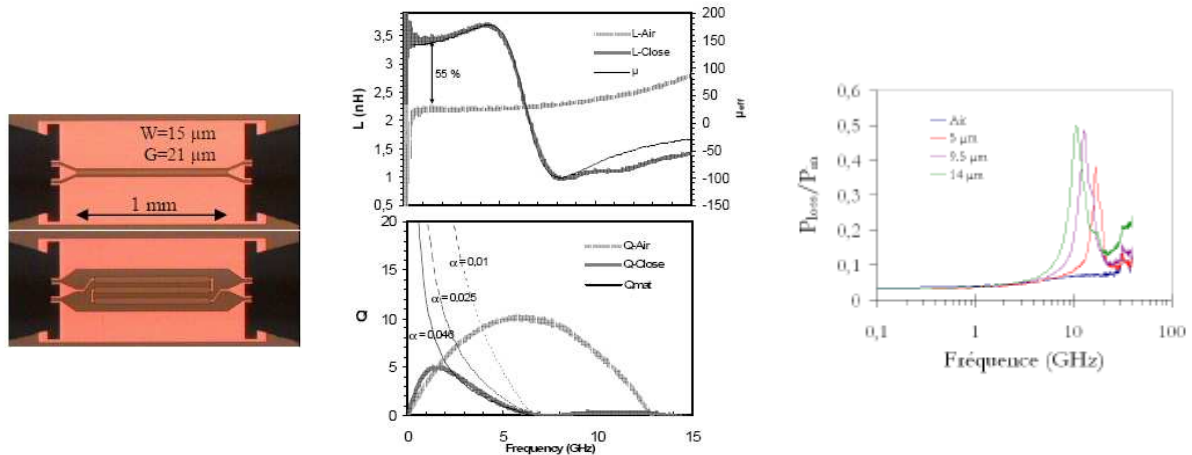


Fig. 19 : principales caractéristiques des inductances « méandres » et des « noise suppressors » à brins encapsulés utilisant l'hétérostructure NiM(50nm)/[Fe₆₅Co₃₅(50nm)/NiMn(50nm)]x5

5.2.3 Résonateurs dimensionnels

Une autre façon d'appréhender les performances de ces topologies est de considérer le pendant à l'inductance en termes de propagation à partir de la grandeur clé qui est la constante de propagation $\gamma = \alpha + j\beta$, avec β la constante de phase et α la constante d'atténuation. Je rappelle brièvement les relations pour γ ou la longueur d'onde guidée λ_g :

$$\gamma = \omega \sqrt{\mu_{eff} \times \epsilon_{eff}} \quad \text{Eq. 66}$$

$$\lambda_g = \frac{c}{f \sqrt{\mu_{eff} \times \epsilon_{eff}}} \quad \text{Eq. 67}$$

Elles dépendent des grandeurs effectives de l'environnement avec lequel l'onde est couplée. Or, l'efficacité du couplage du brin avec la couche mince magnétique qui l'entoure est ici très grande. On observe donc un gain significatif sur β (~ 30 %) avec une dégradation modérée de α , à l'instar des parties réelle et imaginaire de l'impédance pour la self. On esquisse donc l'idée d'une possible réduction de taille des éléments résonants (1/2-onde, 1/4-onde ...) très courant en hyperfréquences pour les filtres et la conversion d'impédance. Je reprendrai l'idée d'une *compression de λ_g* dans les perspectives sous une forme plus étendue.

6. Conclusion

Ce chapitre est parti de l'idée de rompre avec le développement des films d'alliage unique, qui est contraint à un périmètre fixé par ce que j'ai appelé les trois *fondamentaux*. Le recours aux composés binaires de FeCo est très avantageux, notamment, avec la composition Fe₆₅Co₃₅ qui réalise la valeur record d'aimantation à saturation avec ~ 2.4 T. La combinaison avec le couplage d'échange interfacial lève les verrous à l'usage du ferromagnétisme pour les

hyperfréquences mais il reste des limitations à repousser – *par exemple : les épaisseurs ferromagnétiques sont modérées*. La motivation pour ce chapitre au contenu encore préliminaire portait sur la restitution de faits marquants. J’ai montré qu’il n’y a pas de difficulté particulière en termes de procédés et de réplification des interfaces F/AF. J’ai montré également que les performances des premières hétérostructures pouvaient rivaliser avec celles des meilleurs films d’alliage unique qui bénéficient d’une plus longue expérience. Elles s’en détachent aussi définitivement par la bande spectrale exceptionnellement élevée (*10 GHz et plus*) qu’elles adressent. Il n’y a pas d’équivalent dans la littérature, en dehors du recours à des moyens de polarisation externes. Je fais remarquer ici que les disciplines connexes dont je n’ai pas parlé, notamment, l’instrumentation RF, l’imagerie micromagnétique (microscopie de Lorentz), la simulation dynamique micromagnétique et la physique du couplage d’échange, ont été très présentes et continuent à être tirées de l’avant par les perspectives à cette étude. L’objectif était aussi de réaliser *rapidement* des composants élémentaires, ce qui a permis d’évaluer un degré de difficulté d’intégration et d’usage relativement faible en comparaison aux films d’alliage unique du chapitre 3. Les prochaines étapes devront viser la consolidation de cette étude sur deux terrains identifiés : la dilution de la perméabilité (*ou de l’aimantation*) et le caractère conducteur qui restent les critiques principales des hétérostructures multiples. L’étude approfondie de couches AF (*les compositions peuvent désormais s’écarter de celles de spintronique*) à très faible épaisseur critique et à forte résistivité est indispensable. Concernant la résistivité, le fait de posséder deux degrés de liberté est un avantage qui évite de reporter l’intégralité du poids de cette contrainte sur la seule couche F (*pénalisant pour l’aimantation*). Au-delà de ces améliorations, on peut déjà se projeter en aval de cette rupture. Je propose, par exemple, l’extension de ce principe à d’autres combinaisons dont celle avec la ferroélectricité. Pouvoir réunir ferromagnétisme et ferroélectricité pour les hyperfréquences grâce aux hétérostructures permet de (re)aborder la magnétoélectricité sous un nouveau jour.

Références

1. ITRS roadmap, www.itrs.net
2. "Exchange coupling in FeTaN/IrMn/FeTaN and NiFe/IrMn/NiFe trilayer films", Jung H., Doyle W., Fujiwara H., Wittig J. E., Al sharab J. F., Bentley J., and Evans N. D., *Journal of Applied Physics*, 91, 6899, 2002
3. "New magnetic anisotropy", Meiklejohn W. H. and Bean C. P., *Physical Review*, 102, 1413, 1956
4. "Matériaux magnétiques doux hétérogènes à combinaison d’aimantation élevée et de grande anisotropie utilisant le couplage d’échange, pour applications microondes", Y. Lamy, Thèse de l’Université de Limoges, 2006
5. "Exchange anisotropy - a review", Berkowitz A.E. and Takano Kentaro., *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 200, 552–570, 1999
6. "Exchange bias", Noguès J. and Schuller I. K., *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 192, 203–232, 1999
7. "Giant magnetoresistance in soft ferromagnetic multilayers". Dieny B., Szeferoski V. S., Parkin S. P., Gurney B., A., Wilhoit D. R. and Mauri D., *Physical Review B*, 43, 1297, 1991
8. "Blocking temperature distribution and long-term stability of spin-valve structures with Mn-based antiferromagnets", Nozières J. P., Jaren S., Zhang Y. B., Zeltser A., Pentek K., and Szeferoski V. S., *Journal of Applied Physics*, 87, 3920, 2000
9. "Effect of exchange coupling of polycrystalline antiferromagnetic layers on the magnetization behaviors of soft magnetic layers", Fujiwara H., Hou C., Sun M., Cho H. S., and Nishioka, *IEEE Transactions on Magnetism*, 35, 3082–3087, 1999
10. "Anomalous spin-wave damping in exchange-biased films", Rezende S.M., Azevedo A., Lucena M. A., and de Aguiar F. M., *Physical Review B*, 63, 214418, 2001

11. "Dynamic magnetic anisotropy at the onset of the exchange bias : the NiFe/IrMn ferromagnet/antiferromagnet system", McCord J., Roland M., and Elefant, D. *Physical Review B*, 70, 094420, 2004
12. "Large scale micromagnetic simulation for the exchange interaction between a polycrystalline antiferromagnet and a ferromagnet", Jyotirmoy Saha and R. H. Victora, *Physical Review B*, B 73, 104433 _2006
13. "Combination of ultimate magnetization and ultrahigh uniaxial anisotropy in CoFe exchange-coupled multilayers", Y. Lamy, B. Viala, *Journal of App. Phys.* 97, 10F910, 2005
14. "Temperature Dependence of Magnetic Properties of AF-Biased CoFe Films with High FMR-Frequency", Y. Lamy, B. Viala, *IEEE Trans. Mag*, 41, 3517, 2005
15. "NiMn, IrMn and NiO Exchange Coupled CoFe multilayers for Microwave Applications", Y. Lamy, B. Viala, *IEEE Trans. Mag*, 42, 3332, 2006
16. "Consequences of Spin-Flop Coupling in Exchange Biased films", Schultess T. and Butler W., *Physical Review Letters*, 81 4516, 1998
17. "Ferromagnetic resonance studies of NiO-coupled thin films of NiFe", McMichael R. D., Stile M. D., Chen P. J., and Egelhoff W. F. Jr., *Physical Review B*, 58(13), 8605, 1998
18. "Pulsed inductive microwave magnetometer response calculated for IrMn/FeNi bilayers", Dorfbauer F., Schrefl T., Suess D. Kirschner M., Hrkac G., and Fidler J., *European Physical Journal B*, 45, 267–271, 2005
19. "Temperature dependence of ferromagnetic resonance in permalloy/NiO exchange-biased films", Dubowik J., Stobiecki F., Goscianska I., Lee Y. P., Paetzold A., and Röhl K., *European Physical Journal B*, 45, 283–288, 2005
20. "Magnetization reversal and spin dynamics exchange in biased F/AF bilayers probed with complex permeability spectra", Spenato D., Ben Youssef J., and Le Gall H., *Journal of Applied Physics*, 93(10), 7711, 2003
21. "Microwave permeability study for antiferromagnet thickness dependence on exchange bias field in NiFe/IrMn layers", Queste S., Dubourg S., Acher O., Soret J.-C, Barholz K.-U, and Mattheis R., *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 288, 60–65, 2005
22. "Evaluation of Exchanged-Bias Magnetic Material for High Density GHz Toroidal Integrated Inductor"; B. Orlando, A.-S. Royet, B. Viala, *Trans. Mag. Soc. Japan*, 2006
23. J.P. Michel : "Lignes coplanaires ferromagnétiques sur silicium pour applications microondes", DRT, UJF, 2006
24. "Composant microélectronique intégré pour applications radiofréquence avec un circuit magnétique fermé pour le filtrage du bruit électromagnétique", B. Viala, A-S. Royet, Y. Lamy, J.P. Michel, *N° EN 05 05346*
25. "New RF Magnetic Stripe Inductors with Flanges based on Exchange-Coupled Magnetic Films", J.P. Michel, Y. Lamy, B. Viala, *IEEE Trans. Mag*, 42, 3368, 2006
26. "Thin-film RF noise suppressor integrated in a transmission line", M. Yamaguchi, K.H. Kim, T. Kuribara, K. I. Arai", *IEEE Trans. on Magnetics*, **38**, (5), p. 3183, 2002

Conclusion générale

Ce manuscrit est consacré à l'idée d'utiliser la perméabilité élevée qu'autorise le ferromagnétisme doux dans le domaine des hyperfréquences. J'ai souhaité couvrir les principaux tournants de l'état de l'art qui part des matériaux massifs historiques. Ils sont l'aboutissement d'efforts successifs consacrés par la communauté scientifique pour établir la transition vers les couches minces. J'ai voulu montrer que cette transition se faisait au prix de difficultés récurrentes que j'ai d'abord rassemblées sous formes de *fondamentaux* puis illustrées à partir d'exemples concrets triés dans mes propres travaux. J'ai conservé un souci constant pour l'intégration et la compatibilité des applications sur silicium. La progression ininterrompue de la montée en fréquence m'a amené à passer en revue les couches minces polycristallines de Permalloy, les couches minces amorphes de CoZr et les couches minces nanocristallines de Fe-N(O) qui cherchent toutes à répondre, avant tout, à un faible champ coercitif. Ce préalable à l'optimisation des autres caractéristiques décisives que sont l'aimantation à saturation, le champ d'anisotropie et la résistivité, s'avère contraignant. J'ai commenté de nombreux compromis à l'état de l'art du moment et mis en exergue des solutions originales qui passent par la suppression des domaines magnétiques (*edge curling wall*) ou la manipulation fine de la microstructure (*grain refining*) et des caractéristiques monocristallines (*lattice dilation*). Je conclus aussi quant à la partialité de ces compromis et à leur insuffisance à satisfaire la fiabilité qui conditionne tout transfert vers l'industrie. La dernière partie du manuscrit est consacrée à un changement de stratégie qui consiste à rompre avec l'idée de films d'alliage unique pour lesquels l'ajout incontournable d'éléments d'addition (Hf, N, O ...) pèse au final sur l'aimantation à saturation. Je montre que le recours à des hétérostructures combinant composés binaires à très haute aimantation ($\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$) et couplage d'échange à l'interface avec des composés antiferromagnétiques lève les verrous identifiés précédemment. Les résultats, bien qu'encore préliminaires ici, montrent qu'un pas décisif a été franchi avec la possibilité de résonances ferromagnétiques très fines et pouvant dépasser les 10 GHz en champ nul. Bien sûr, d'autres difficultés apparaissent comme une dynamique de l'aimantation plus complexe à cause d'une possible contribution des grains AF eux-mêmes ou un risque de dilution de la perméabilité effective lié à l'épaisseur des couches AF. Mais dans l'ensemble, la démonstration est faite d'une autre voie possible pour bénéficier des avantages du ferromagnétisme aux hyperfréquences. D'une façon générale, j'ai illustré ce document d'un certain nombre d'applications concrètes qui visent l'objectif imposé pour justifier d'une valorisation industrielle : la miniaturisation. Celle-ci prend une importance déterminante aux niveaux des fréquences de la téléphonie mobile au-delà d'une simple économie de surface de silicium avec les inductances, par exemple. Elle peut rendre accessible des technologies hyperfréquences très simples, pour le filtrage et la conversion d'impédance, au domaine du silicium en lieu et place d'architectures plus complexes et grandes consommatrices de composants passifs et actifs. Cette forte potentialité m'amène à étendre le concept de ces hétérostructures à d'autres combinaisons dont celles avec la ferroélectricité. Je prends juste un exemple ici : combiner forte perméabilité et forte permittivité décuple le potentiel de réduction de taille et ces nouvelles hétérostructures, que l'on peut qualifier de *multiferroïques*, sont à portée de main. C'est ce que je décris dans les perspectives qui suivent.

Perspectives

Analyse d'un contexte

L'évolution des techniques de dépôt des couches minces est telle qu'elle rend aujourd'hui crédible l'idée d'une convergence entre des disciplines que l'on pense *a priori* cloisonnées. C'est vrai pour le magnétisme et la ferroélectricité, mais pas seulement. Ce *décloisonnement* est un axe fort d'innovation, notamment, pour les hyperfréquences où des ruptures technologiques s'imposent face à l'explosion des niveaux d'intégration et de fonctionnalisation des futurs systèmes de télécommunication (on annonce 11 standards cumulés sur les prochaines plateformes multimédia mobiles). On parle désormais de *Radio Opportuniste*, qui est un des axes majeurs de recherche pour les dix prochaines années. La difficulté des enjeux associés requiert une grande proximité entre les communautés scientifiques, depuis les sciences de la matière jusqu'aux mathématiques appliquées.

Mais c'est oublier aussi que ces disciplines ont pu cohabiter à un certain moment parce que les techniques en cours le permettaient. C'est le cas de la *magnéto-électricité*, et l'honnêteté m'oblige à dire que finalement je ne fais ici que revisiter un terrain déjà connu mais avec une vision réactualisée des besoins. Ainsi, je propose d'exploiter plus largement le principe d'*hétérogénéité* en couches minces, au sens littéral d'un caractère résultant de l'association d'éléments de nature différente, parce qu'elle offre la possibilité d'établir des propriétés nouvelles ou plus exactement n'existant pas à l'état naturel. Et, les ruptures attendues sont à prix. Elles peuvent résulter de la sommation simple de propriétés individuelles « *sum properties* » ou du produit de ces dernières « *product properties* ». On a là, déjà, les prémices aux matériaux magnétiques commandables par la tension [1], qui ouvriront ensuite le chemin aux très actuels composés *multiferroïques* [2]. On peut aussi esquisser un schéma inverse où le ferromagnétisme hyperfréquence rejoint aujourd'hui des disciplines émergentes comme celle des *metamatériaux* ou de la *plasmonique* [3]. Je proposerai donc des pistes d'étude couvrant ces différents aspects. Elles s'inscriront dans l'évolution actuelle de la microélectronique qui tire la communauté du silicium en dehors de la route historique tracée par la loi de Moore (c'est le « More than Moore »). Je donne, dans ce qui suit, une idée concrète de certaines d'entre elles mais avec la difficulté supplémentaire de respecter un souci de confidentialité en raison de demandes de dépôt de brevet en cours [4-6].

Vers des hétérostructures « multiferroïques »

L'étape décisive à cette réflexion a été celle qui a suivi le développement des hétérostructures magnétiques AF/(F/AF)_{xn} vues au chapitre 3. La suite logique consistait à intercaler, à l'image des laminations des chapitres 2 et 3, une fine couche de diélectrique (D) pour rompre définitivement avec la problématique de l'effet de peau, avec un empilement du type : D/[(AF/F/AF)/D]_{xn}. A la critique sur la relative complexité de cette structure s'est rapidement substituée l'idée d'utiliser non pas un simple diélectrique (tel que SiO₂) mais une véritable couche mince ferroélectrique (FE). Je parlerai dès lors d'hétérostructures *multiferroïques*. Les combinaisons sont multiples et désormais à la jonction des quatre propriétés fondamentales représentées sur la figure 1 :

- | | |
|--------------------------------------|----|
| - le ferromagnétisme | F |
| - l'antiferromagnétisme | AF |
| - la ferro(<i>para</i>)électricité | FE |
| - la piezoélectricité | PE |

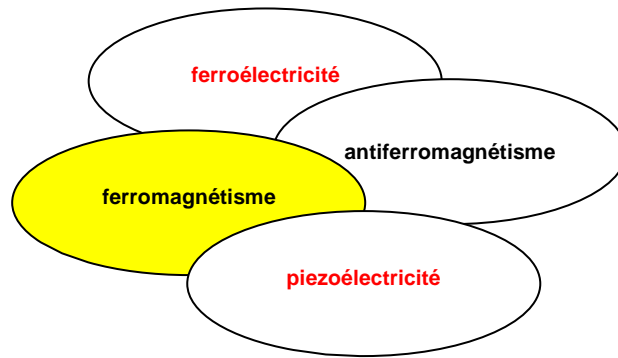


Fig. 1 : illustration du croisement des disciplines pour la magnéto-électricité en couches minces

Le verrou sur les « températures »

L'état de l'art, même ancien, ne fait pas mention de réalisations directement connexes à cette idée, à la seule exception d'associations strictement binaires F sur FE (ou PE). Le cas le plus représentatif reste celui des ferrites (y compris en couche mince) déposée sur un substrat céramique. Il y a donc une difficulté fondamentale à la réalisation d'une telle hétérostructure. Le verrou reste l'incompatibilité *historique* en température des matériaux ferromagnétiques et ferroélectriques. La figure 2 donne une illustration simplifiée de l'écart qui sépare actuellement l'état de l'art conventionnel des couches minces ferromagnétiques de celui des couches minces ferroélectriques. En effet, les températures mise en œuvre pour ces dernières dépassent en général 500°C (voire 900°C pour PE), qu'elles que soient les techniques de préparation (*MBE, PLD, MOCVD, PVD, Sol-gel ...*), ce qu'aucun matériau magnétique (ferro., ferri. ou antiferro.) ne supporte sans dégradation irréversible. Mais cette figure laisse aussi entrevoir une possible connexion entre les hétérostructures magnétiques du chapitre 3 et les couches minces de pérovskites très récentes [7]. C'est précisément la réalisation de cette jonction qui est au centre de ces perspectives et fait l'objet de brevets. La suite est une déclinaison d'applications spécifiques mais déterminantes au regard des états de l'art associés. J'en réduis la description aux fondements par soucis de concision.

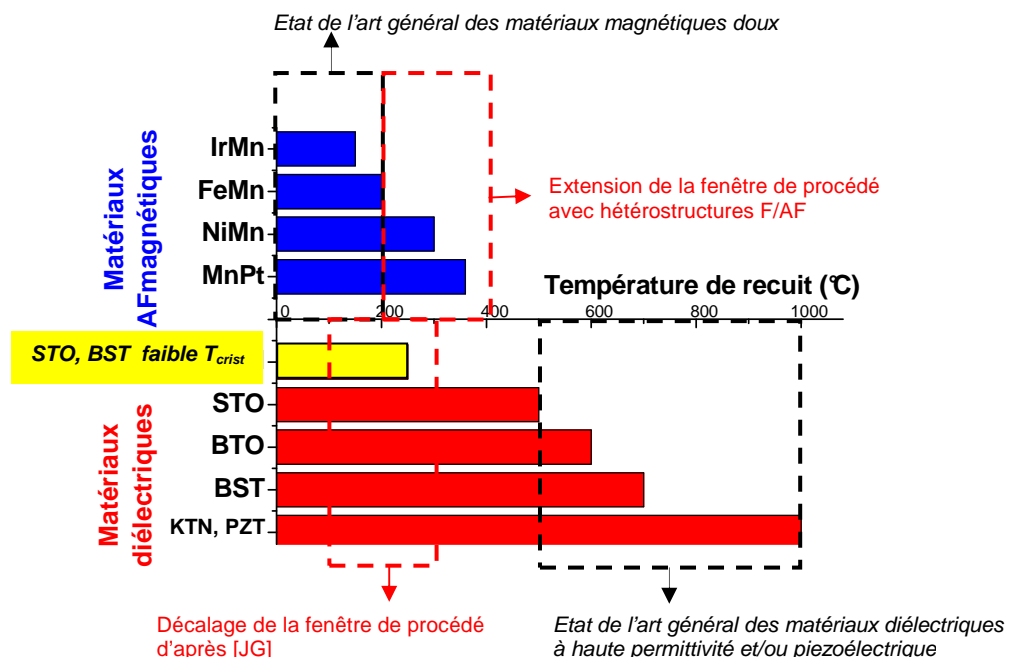
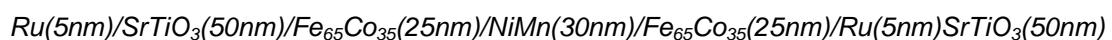


Fig. 2 : illustration des écarts en termes de compatibilité thermique entre matériaux magnétiques et ferroélectriques. Note : les températures mises en jeu correspondent aux extrema des barres horizontales.

A ce stade, notre effort porte sur l'étude approfondie de la technique de dépôt par faisceaux d'ions (IBS pour *Ion Beam Sputtering*), moins conventionnelle, mais qui montre l'avantage exceptionnel d'abaisser les températures de cristallisation de SrTiO₃ et de BaSrTiO₃ à moins de 400°C. L'étude d'hétérostructures mixtes F-AF-FE réalisée intégralement par cette technique est en cours. On revendique, notamment, le fait que le recours au couplage F/AF (voir Fig. 2) étend la fenêtre des températures supportables par F jusqu'à 400°C. On converge actuellement sur la possibilité d'un recuit unique à 350°C satisfaisant à la fois aux conditions de cristallisation de la phase pérovskite FE (ou para.) et de la phase ordonnée AF, sans dégradation de F. Dès lors, la maîtrise de couches minces polycristallines de pérovskites combinée à celle d'électrodes magnétiques ouvre sur des possibilités multiples dont certaines rejoignent directement la spintronique. En particulier, la possibilité de jonctions tunnels à barrière de SrTiO₃ polycristalline (par opposition aux couches monocristallines par MBE qui sont mieux établies) est un enjeu déterminant [5] pour succéder à la génération actuelle avec MgO, dans l'optique de réalisations industrielles (têtes de lecture TMR, MRAM et nanooscillateurs à courant polarisé en spin). Par cohérence avec le manuscrit, les exemples d'applications suivants sont focalisés sur les hyperfréquences.

1.1 Compression de la longueur d'onde guidée

Si je reprends les expressions de la vitesse de propagation (Eq. 66) ou de la longueur d'onde guidée (Eq. 67) dans un milieu où les propriétés effectives sont très différentes de celles de l'air, on identifie un moyen d'augmenter la première ou de réduire la seconde en jouant sur le produit de la perméabilité et de la permittivité du milieu. C'est ce que l'on explore actuellement sur la base de l'hétérostructure élémentaire type suivante :



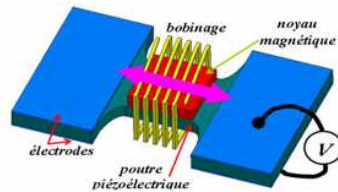
Les premiers résultats font état d'une valeur élevée du produit spécifique $\mu \times \epsilon$ jamais observée, de l'ordre de 10^4 , et compatible avec des pertes modérées ($tg \delta < 10^{-2}$) jusqu'à au moins 5 GHz. Je précise qu'ici le compromis se réduit seulement au caractère *paraélectrique* de SrTiO₃. Des variantes avec BaSrTiO₃, qui a la potentialité d'être ferroélectrique dans des conditions significativement plus contraignantes, seront à l'étude très prochainement. L'objectif applicatif est ambitieux et vise à réduire la longueur électrique des éléments *1/2-onde* pour les structures résonantes (filtres) ou rayonnantes (antennes) par au moins un facteur 10. L'effort conjoint sur le design de ces composants porte prioritairement sur l'optimisation du couplage entre l'onde électromagnétique et ce milieu hétérogène qui reste avant tout une couche mince.

1.2 Agilité hyperfréquence

L'accès au ferromagnétisme et à la ferroélectricité offre la combinaison extraordinaire des deux grandeurs fondamentales pour les hyperfréquences : μ et ϵ , qui sont modifiables par nature avec des moyens de polarisation adéquats (habituellement H pour μ et E pour ϵ). Les propriétés des dispositifs associés fondées sur une dépendance forte avec ces deux grandeurs (on l'a vu avec les composants inductifs ici) sont donc *commandables*, et dans des proportions très importantes ($\times 100$) avec le ferromagnétisme [8]. On parle donc d'agilité en fréquence. C'est l'un des enjeux déterminant pour les futurs circuits de *la radio opportuniste*. Mais, les exigences d'intégrabilité et de basse consommation écartent le recours à la polarisation par le champ magnétique (ce qui vaut aussi pour la spintronique). Ainsi, commander la perméabilité (et plus largement l'aimantation) par le champ électrique ou la tension a toujours été la préoccupation majeure de la magnéto-électricité, qui se tourne plutôt aujourd'hui vers les composés *multiferroïques*. Issus, pour la très grande majorité d'alliages homogènes, je

justifierai ici la même démarche qu’au chapitre 4 à leur rencontre, au regard du nombre de degrés de liberté moins nombreux devant ceux des hétérostructures. Mais les hétérostructures ne résolvent pas pour autant immédiatement la problématique de la commande de $\mu(V)$. En général, le principe le plus simple auquel on fait appel relève de la magnéto-élasticité (exemple par excellence de « *product properties* ») par la combinaison piezo-magnétique, le plus souvent par le biais du PZT (PbZrTiO_3) qui est un des standards de la piezoélectricité. Or, on est précisément ici dans le domaine verrouillé pour les hétérostructures puisqu’il n’existe pas à ce jour de compromis sur les températures pour les couches minces, comme on l’a vu dans la figure 2.

On est donc réduit à une bicouche F (ou toute combinaison avec AF) sur PE. L’idée la plus immédiate reste l’exploitation de l’effet magnéto-élastique qui consiste à contraindre plus ou moins l’interface avec F, à supposer que F soit magnétostrictif. J’ouvre une parenthèse parce que c’est un avantage unique ici des films de Fe-N, FeCo-N et CoFe-B d’avoir des niveaux de magnétostriction intermédiaires et ajustables dans une gamme parfaitement adaptée aux applications visées ici (typiquement λ_s est positif et compris entre $5 \cdot 10^{-6}$ et $50 \cdot 10^{-6}$). Dans ces conditions, l’option qui nous est offerte est de passer par des technologies MEMS pour structurer de façon appropriée cette bicouche, ce que le recours aux substrats massifs PE (céramiques) ne résout pas dans sa totalité [9]. L’idée que nous défendons ici consiste à utiliser un principe d’actionneur intégré pour réaliser une source de contrainte uniaxiale commandable en compression comme en tension, pour satisfaire aux conditions imposées par l’anisotropie uniaxiale (ou unidirectionnelle) des couches minces magnétiques. C’est la maîtrise du caractère uniaxial des contraintes et des amplitudes associées (jusqu’à plusieurs 100^{aines} de MPa) qui nous différencie de l’état de l’art historique fondé sur l’utilisation de céramiques piezoélectriques. Le principe de cet actionneur a été exposé dans la thèse de B. Orlando et fait l’objet du brevet [10]. Il est actuellement revisité dans son intégralité pour permettre à terme un flot de conception multi-physique dans sa totalité car il s’agira d’un MEMS RF complet (inductance RF variable, par exemple) obligeant, notamment, à minimiser les ruptures d’impédances associées à l’hétérogénéité hors norme de cette structure.



$$H_{\text{magnetoelastic}} = \left| \frac{3\lambda_s \sigma_{\text{uniax}}(V)}{M_s} \right|$$

Fig. 3 : principe de base du MEMS Piezomagnétique à contrainte uniaxiale accordable [10]

1.3 Alternative aux metamatériaux

Les hétérostructures magnétiques et multiferroïques pour les hyperfréquences présentent aussi des intérêts qui dépassent la simple utilisation sous forme de films continus. Dès lors, on touche au domaine des revêtements structurés et des milieux périodiques qui rejoint les travaux sur les surfaces à réflexion parfaite [11] utilisant le principe des bandes interdites et des *metamatériaux* [12] fondés sur l’effet Veselago [13].

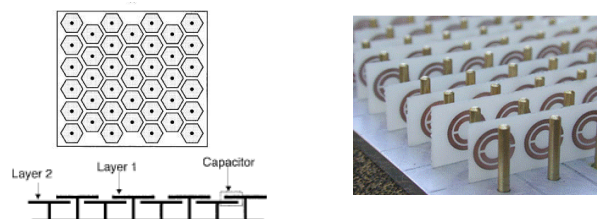


Fig. 4 : exemples de topologies périodiques à bande interdite (à gauche) et à effet main gauche (à droite)

A ce stade, nos ambitions ne sont pas de rivaliser avec les états de l'art établis, mais de trouver des alternatives au manque d'intégration et d'efficacité (Fig. 5, graphes de gauche) des systèmes existants (Fig. 4). En particulier, le niveau exceptionnel de perméabilité des hétérostructures, qui rejoint désormais le haut de la bande spectrale de l'électromagnétisme, prend une importance particulière ici parce qu'elles peuvent se substituer aux solutions artificielles initiées par Pendry [14]. Des travaux préliminaires ont démarré et visent en particulier à étudier les régimes d'ondes évanescentes associés aux modes singuliers de propagation correspondants aux deux *cadres* inhabituels (D et C) de la figure 5.

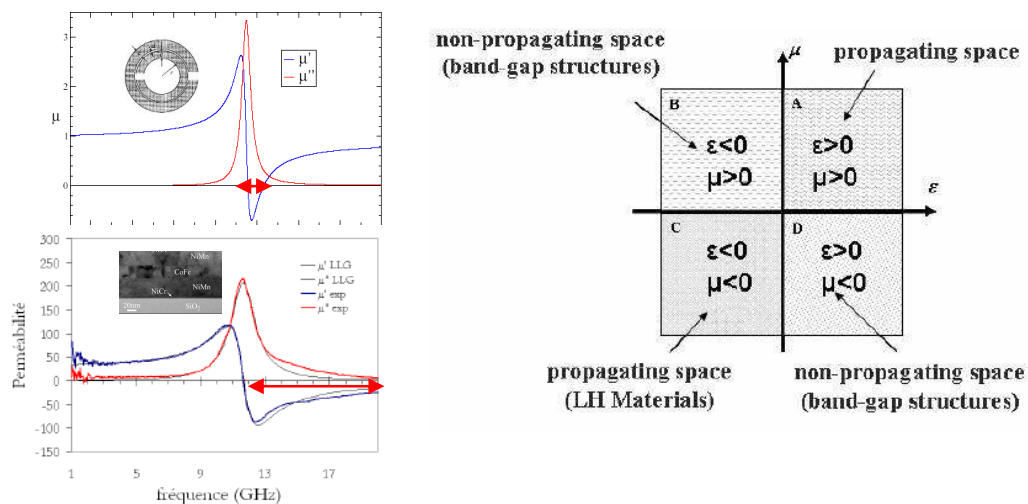


Fig. 5 : comparaison des spectres de perméabilité artificielle (en haut) et naturelle (en bas) et illustration des 4 cadres électromagnétiques

1.4 Commande de l'aimantation par la tension

Pour terminer ces perspectives, certaines des combinaisons proposées ici, notamment PE/F et F/[AF/FE] (ou [FE/AF]/F), peuvent être étendues à d'autres domaines d'intérêt pour une commande des états d'aimantation par la tension, comme la spintronique et les commutateurs intégrés (*microswitches*). Ces axes font partie de perspectives qui seront abordées prochainement :

- mémoires magnétiques à renversement commandé en tension (FE-MRAM)
- interrupteurs bistables à multi-positions par rotation de l'axe de facile aimantation

Collaborations

Je conclus cette dernière partie en précisant que ces perspectives n'auraient pas de sens si elles n'associaient pas un périmètre de collaboration large, en adéquation avec celui des disciplines et des métiers multiples qui y sont abordés, dont ici :

XLIM UMR-CNRS 6172 à Limoges

LabSTIC UMR-CNRS 6165 à Brest

IETR UMR-CNRS 6164 à Rennes

G2ELab UMR-CNRS 5269 et Institut Néel UPR-CNRS 5031 à Grenoble

Spintec URA-CEA/CNRS 2512, INAC/NM et LITEN au CEA-Grenoble

la DGA, l'ANR et les Instituts Carnot

et aussi Dassault Aviation à Saint Cloud et France Télécom R&D à Meylan

Références

1. "Magnetic design for low-field tunability of microwave ferrite resonators", G.F. Dionne and D.E. Oates, J. Appl. Phys. 85, 4856, 1999
2. "Multiferroics: progress and prospects in thin films, Nature Materials, R. Ramesh, N.A. Spaldin, VOL. 6, pp. 21-29, 2007
3. "Negative-refraction Metamaterials : fundamental, principles and applications", G.V. Eleftheriades and K.G. Balmain, IEEE Press and John Wiley & Sons, ISBN : 0-471-60146-2, 2005
4. "Film mince à perméabilité et permittivité élevées", B. Viala, K. Garello, E. Bénevent, C. Dubarry, demande de dépôt de brevet CEA DD10835CV
5. "Procédé pour la réalisation d'une jonction tunnel magnétique et jonction tunnel magnétique ainsi obtenue", B. Viala, K. Garello, M.C. Cyrille, O. Redon, B. Dieny, demande dépôt de brevet CEA DD10868CV
6. "Réseau de fils ferromagnétiques à effet main gauche", B. Viala, K. Garello, E. Bénevent, demande dépôt de brevet CEA DD10831CV
7. "Etude de capacités en couches minces à base d'oxydes métalliques à très forte constante diélectrique, BaTiO₃, SrTiO₃ et SrTiO₃/BaTiO₃ ", Julie Guilan, Thèse de l'Université Joseph Fourier de Grenoble, 2005
8. "Correlation between magnetic properties of layered ferromagnetic/dielectric material and tunable microwave device applications", E. Salahun, P. Quéffelec, G. Tanné, A.L. Adenot, O. Acher, J. Appl. Phys, Vol. 91, N°8, pp. 5449-5455, 2002
9. "Etude et caractérisation de composites piézoélectriques/magnétostrictifs à permittivité et perméabilité variables par couplage mécanique : applications aux dispositifs hyperfréquences accordables en fréquence", S. Debiasi, Thèse de l'Université de Bretagne Occidentale, 2007
10. "Inductance variable intégrée contrôlée piézoélectriquement et procédé de fabrication d'une telle inductance", B. Orlando, B. Viala, S. Henz, N°EN 06 07966
11. "Thin absorbing screens using metamaterial surfaces", N. Engheta, Antennas and Propagation Society International Symposium, Vol. 2, pp. 392 – 395, 2002
12. "Demonstration of a backward wave in a single split ring resonator and wire loaded finline", T. Decoopman, O. Vanbésien, D. Lippens, IEEE Microwave and Wireless Components LETTERS, VOL. 14, NO. 11, pp. 507-509, 2004
13. "About properties of substances with simultaneously negative values of dielectric and magnetic permeabilities", V.G. Veselago, Soviet Phys. Solid State 8, 2853, 1968
14. "Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena", J.B. Pendry, A.J. Holden, D.J. Robbins and W.J. Stewart, IEEE Trans. Microwave Theory and Techniques, VOL. 47, NO. 11, pp. 2075, 1999