



**HAL**  
open science

# Propriétés magnétiques du système Pt/Co/AlOx et ses variations sous champ électrique

Marine Schott

► **To cite this version:**

Marine Schott. Propriétés magnétiques du système Pt/Co/AlOx et ses variations sous champ électrique. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAY032 . tel-01696668

**HAL Id: tel-01696668**

**<https://theses.hal.science/tel-01696668>**

Submitted on 30 Jan 2018

**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.

## **THÈSE**

Pour obtenir le grade de

### **DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **Physique - Nanophysique**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Marine SCHOTT**

Thèse encadrée par **Anne BERNAND-MANTEL** et **Hélène BEA**,  
Thèse dirigée par **Claire BARADUC** et **Jan VOGEL**

préparée au sein de l'**Institut Néel, CNRS / Laboratoire Spintec,**  
**CNRS-CEA, INAC**  
dans l'**École Doctorale de physique de Grenoble**

## **Propriétés magnétiques du système Pt/Co/AlO<sub>x</sub> et ses variations sous champ électrique**

Thèse soutenue publiquement le **26 octobre 2017**,  
devant le jury composé de :

**Mr. François MONTAIGNE**

Professeur Université Jean Lamour Nancy, Rapporteur

**Mme Véronique DUPUIS**

Directrice de recherche ILM Lyon, Rapporteur

**Mr. Mairbek CHSHIEV**

Professeur UGA Grenoble, Président du jury

**Mr. Alain MARTY**

Chercheur HDR CEA Grenoble, Membre

**Mr. Nicolas REYREN**

Chercheur CNRS CNRS/Thales Palaiseau, Membre





# Remerciements

Lorsque je repense à l'aventure de la thèse ainsi qu'à la journée qui l'a clôturée, je me dis que tout cela est allé beaucoup trop vite. Et pourtant, il est venu le temps pour moi de dire au revoir. Je prendrais donc le temps dans ces quelques pages de le faire correctement.

Je tiens donc tout d'abord à remercier les membres de mon Jury Véronique Dupuis, François Montaigne, Alain Marty, Nicolas Reyren et Mair Chshiev pour avoir pris de leur temps pour évaluer mon travail de thèse. Merci à Mair d'avoir animé la soutenance de manière exemplaire ; merci à Nicolas pour ses corrections très complètes et merci à mes rapporteurs Véronique et François d'avoir passé du temps à lire ces nombreuses pages.

Je voudrais ensuite remercier mes encadrants et encadrantes Anne, Hélène, Claire, Laurent et Jan. Merci à toi Anne pour m'avoir guidée depuis mon stage dans le monde de la recherche, merci d'avoir appris à travailler avec moi et merci beaucoup de m'avoir fait confiance, cela signifiait beaucoup pour moi. Merci à toi Hélène pour ta super pédagogie et ton soutien sans faille. Merci d'avoir eu autant d'idées lorsque l'on cherchait un peu comment faire avancer le sujet. Je ne te remercierai jamais assez je crois pour le marathon de corrections que tu as dû faire cet été dans un laps de temps si court ! Ça a été un plaisir de travailler avec vous deux et j'espère que vous allez continuer à travailler ensemble à l'avenir.

Au risque de répéter ce que j'ai déjà dit lors de ma soutenance, je remercie énormément Claire et Laurent pour leur soutien durant ma première année de thèse, lors de l'absence de Anne et d'Hélène. Merci à toi Claire de m'avoir fait une grosse place dans ton agenda et de m'avoir permis de comprendre mon sujet petit à petit. Comme je te l'ai déjà dit, tu es une grande dame de la recherche. Ta maîtrise de la science et des rapports humains me fascine. Ça a été plus qu'agréable de travailler avec toi, et je suis vraiment heureuse que nos chemins se soient croisés durant cette aventure.

De ton côté Laurent, quelqu'un t'avait décrit à moi un jour comme "une mine de savoir", je dois dire que cette expression colle parfaitement. Tu as beaucoup contribué à améliorer ma compréhension de mon sujet de par toutes les discussions que l'on a pu avoir. Je les ai vraiment appréciées car elles me redonnaient confiance tout en étayant ma curiosité. Je te remercie beaucoup pour tout le temps que tu m'as accordé, pour ton extrême pédagogie et pour ton humilité. J'ai aussi particulièrement apprécié pouvoir échanger avec toi sur les techniques d'enseignement, car malheureusement, cela n'est que trop peu fait lors de notre contrat de moniteur. Merci.

Merci à toi Jan pour ton sourire et ta bonne humeur communicative, merci pour ta relecture efficace ce mois d'août et pour m'avoir aidée à répéter de nombreux oraux. Tu auras été un excellent soutien.

J'en profite pour remercier également les personnes de l'équipe Micro et Nanomagnétisme de l'institut Néel (en y incluant Christophe bien sur !) pour l'accueil dont elles ont fait preuve. Comme je l'ai mentionné le jour de ma soutenance, il est très agréable d'évoluer dans cette équipe

car nous ne sommes jamais laissé de reste et chaque personne fait preuve de bienveillance, ce qui ne m'a pourtant pas empêchée de redouter chacune des réunions d'équipe où je devais présenter quelque chose ! J'en profite pour remercier Stefania notre chef d'équipe pour m'avoir accueillie sur son pôle microscopie Kerr.

Le support technique et administratif que nous possédons à l'institut est lui aussi excellent. Merci donc à Angélique Simoès, Mathilde Berard, Jordan François, Caroline Bartoli, Otmane Benhamed et Sabine Gadal. Je remercie tout particulièrement Florence Pois pour son efficacité et sa gentillesse. Ton rôle est essentiel dans l'accueil des étudiants et tu fais cela à merveille, merci ! Et bien sûr merci à Lilian pour son aide dans mon organisation des séminaires non permanents.

Merci aussi à Julien Michel et Patrick Belmain pour leur aide lors de mes déboires informatiques. Merci aussi à l'équipe Nanofab pour leur aide et leur disponibilité Sébastien Dufresnes, Gwénaëlle Julie, Bruno Fernandez et avec un merci tout particulier à Thierry Crozes pour sa patience lors de mon apprentissage de la micro-soudure !

Je remercie aussi le personnel des pôles epitaxie et magnétométrie Didier Dufeu, David Baral, Eric Eyraud avec un merci spécial à Philippe David pour son professionnalisme, ses très bonnes explications et sa gentillesse.

À l'institut, nous possédons un suivi régulier de la part de nos différents départements, ce qui est une très bonne initiative. Je remercie à cette occasion ma marraine de thèse Sophie Debrion pour ses conseils, ainsi que Pierre Mallet, membre de la direction du département QUEST auquel j'appartenais. Je remercie aussi Jérôme Planes qui réalisait le même suivi du côté CEA et qui sait se rendre très disponible pour les thésards de l'INAC.

Par la même occasion, j'en profite pour remercier tous les membres du laboratoire SPINTEC pour leur accueil, malgré mes visites qui se sont faites assez rares finalement.

Comme déjà mentionné lors de ma soutenance, la découverte de la vulgarisation scientifique a été une expérience très inspirante pour moi. Je remercie donc Julien Delahaye, Florence Fernandez et tout particulièrement Pierre Molho.

J'ai aussi eu la chance et l'opportunité de pouvoir devenir moniteur durant deux années de ma thèse et cela a probablement été l'expérience la plus enrichissante de toute ma thèse. Je remercie donc beaucoup mes responsables pédagogiques Bozhidar Velichkov et Jérôme Dejeu qui m'ont accueillie dans leurs équipes pédagogiques.

Ces trois années passées à l'institut ont aussi été l'occasion de faire de nombreuses rencontres assez exceptionnelles. Quoi de mieux que de pouvoir échanger avec ces nombreux étudiants en thèse dont l'expérience est finalement très proche de ce que l'on vit nous-même. Je remercie donc Kawim, Artaud, Chloé, Alexis, Sylvain, Clémontedenous, Beatrix, Emilie, Elie, Ioan, Lorenzo, Jeff, la très jolie Laure, Olivier, Valentin, Gillou, Filippo. Vous avez tous extrêmement contribué à mon épanouissement. L'aide et les conseils que m'a apporté Filippo au commencement de ma thèse m'ont permis de devenir autonome tout en étant épaulée et je te remercie pour le temps que tu as pris pour cela. Je te souhaite aussi beaucoup de réussite dans ton métier d'aujourd'hui.

Merci à toi Ioan pour tes cours de roumain et pour ta joie de vivre !

Je ne sais même pas comment remercier Lorenzo pour avoir été mon tuteur, mon mentor, depuis maintenant 4 ans (le début de notre master). Tu as su trouver les bonnes images pour m'expliquer les choses de manière simple et pour m'aider à faire correctement les liens entre les différents concepts. Tu m'as aidée à gagner en confiance et a contribué à étayer ma curiosité sur ces petites bêtes que sont les skyrmions. Je n'oublierai jamais ton entrain pour le travail, ton

énergie débordante et nos "Frappe la route Jack" !

Chloé, tu sais déjà tout et à quel point je suis heureuse que nos chemins se soient croisés. Je sais que ce n'est que le début, et que l'on a encore énormément à partager toutes les deux (parties de cranium, petites vacances, peut être même une collocation qui sait !) et j'en profite pour te souhaiter le meilleur pour ta soutenance à venir.

La thèse a aussi été l'occasion de croiser le chemin de ce grand personnage qu'est Artaud ! Même si tu ne le sais pas, tu as aussi beaucoup contribué à mon bien être au laboratoire. Tu m'as aidée à gagner confiance en moi et tu as aussi surtout choisi de partager cette passion pour le blokus avec moi. Nous sommes donc liés par le pouvoir du Flouah ! Bravo à toi pour ce magnifique parcours que tu as fait à l'institut, et courage dans ton apprentissage de la langue allemande. A très vite à Legoland !

Merci à Kawim pour toute l'aide et les explications que tu m'as fournies, surtout lors de ma première année. Tu m'as permis de ne pas me noyer au milieu de tous les concepts physiques et les outils de programmation que je ne maîtrisais pas du tout. Je sais que tu vas faire une soutenance mémorable, donc je te souhaite une bonne préparation !

Je remercie aussi Sylvain et Alexis pour tous les moments culture que vous m'apportiez le midi. J'apprenais beaucoup juste en allant déjeuner avec vous ! Je vous remercie de vous être rendus disponibles lorsque je devais préparer un exposé ou lorsque j'avais tout simplement une question qui me trottait dans la tête. Je vous remercie pour votre patience et votre pédagogie (ça vaut aussi pour tes cours de danse Alexis !).

J'en profite pour remercier les différents cobureaux que j'ai pu avoir, dont José et John, qui m'a fait l'agréable surprise de traverser l'océan pour venir assister à ma soutenance. Ainsi que pour remercier Pierre pour ma formation chantier et Edouard pour sa manière de rendre les pauses café inoubliables !

Que serait une journée comme celle-ci sans la venue de ma famille proche. A ce niveau, je ne peux être que comblée d'avoir été si bien entourée et que nombreux d'entre vous aient pu faire le déplacement en semaine. Je suis vraiment heureuse que vous ayez pu finalement entrer dans mon univers des trois dernières années le temps d'une journée. En particulier merci à Toinou, Matthieu et Fannynette qui ont tous pu venir et donc représenter la fratrie en entier.

J'ai eu aussi la visite de nombreux amis pour cette journée ainsi que les jours qui ont suivi et cela m'a énormément touchée car je n'aurais pas imaginé cette journée sans eux. Merci donc à tous mes amis qui sont venus (parfois de très loin) représenter mes époques collège, lycée, licence, master, erasmus, ainsi que les rencontres grenobloises durant ma thèse. Merci donc à Piou, Emmeline, Clémence, Drillou, Matéo, Yacine, Jeanne, Quin, Moanié, Kiki, Laurent, Binôme Max, Charmaine, Anne, Nico Fac, Tanguy, Estelle, Florent Fac, Naïma, Antoine, Adrien, Flo, Chouquette, merci à Roomie pour ta fantastique surprise, c'était totalement réussi, Steffy, Catherine, Jimmy, Nina. Et merci à tous ceux qui n'ont pas pu être là, pour leurs messages d'encouragement le jour J.

Et enfin, je voudrais remercier Yannou pour tout le bien-être que tu m'apportes. C'est un véritable bonheur d'évoluer à tes côtés, je te remercie d'être toi et d'être là pour moi.

## Résumé

Dans le cadre de cette thèse nous nous sommes intéressés aux nouveaux effets liés à l'accumulation de charges électriques au sein de films magnétiques ultraminces, aussi appelés effets de champ électrique. Nous avons étudié l'effet de l'application d'un champ électrique sur les différents paramètres magnétiques de nos films, via des mesures de magnéto-transport et magnéto-optique. Ces mesures ont été conduites sur des tri-couches de  $Pt/Co/AlO_x$  présentant un gradient d'oxydation pour l'alumine. L'oxydation de cette interface étant contrôlée à l'échelle nanométrique, une large gamme de paramètres magnétiques est donc accessible au sein d'un seul et même échantillon. Ceci représente un très bon outil d'étude pour les différents phénomènes intervenant dans ces tri-couches. La caractérisation fine de ces échantillons a permis de mettre en évidence une zone pour laquelle des propriétés très intéressantes ont été observées (domaines périodiques en labyrinthe liés à une forte interaction de Dzyaloshinskii-Moriya, bulles skyrmioniques). La proximité de la température de Curie ( $T_c$ ) de cette zone avec la température de mesure (ambiante) en est la cause principale. Ces bulles skyrmioniques font actuellement l'objet de beaucoup de recherche au niveau national et international, étant considérées comme potentiellement très attractives pour des applications de type mémoire et logique magnétique. L'originalité de ce travail de thèse a été de montrer que ces bulles skyrmioniques sont fortement influencées par le champ électrique, dû au fort contrôle des propriétés magnétiques de cette zone (anisotropie, champ coercitif, aimantation à saturation, facteur  $DMI$ ). Nous proposons le design d'un interrupteur nanométrique permettant de créer ou effacer ces bulles skyrmioniques grâce à une tension, levant ainsi un verrou important pour la mémoire/logique magnétique basée sur ces bulles skyrmioniques. La potentialité de ces nouveaux effets pour réaliser un renversement d'aimantation/une création de bulles skyrmioniques, assistés par champ électrique, a été étudiée à température ambiante, ce qui est compatible avec les applications.

**Mots-clés :** Spintronique, nanomagnétisme, couplage magnéto-électrique, bulles skyrmioniques, gradient d'oxydation,  $Pt/Co/AlO_x$ , Anisotropie Magnétique Perpendiculaire ( $PMA$ ),  $T_c$  faible, interaction de Dzyaloshinskii-Moriya ( $DMI$ )

## Abstract

During my PhD, we chose to study the particular effects that are linked to the electric charge accumulation in the nano-magnet. This effect, also known as the electric field effect, was studied on the different magnetic properties of our films. They were probed by magneto-transport and magneto-optical measurements. These measurements were conducted on asymmetric  $Pt/Co/AlO_x$  trilayers. These structures were sputter-deposited on a wedge shape for the alumina. This leads to a nanometric control of the oxidation degree of the interface. Then, a wide range of magnetic parameters is available on a unique sample. Systematic characterization of these structures showed an interesting zone for magnetic properties (spontaneous stripe domains linked to a strong Dzyaloshinskii-Moriya interaction, skyrmionic bubbles). The observation of this type of magnetic object is directly linked to the weak Curie temperature ( $T_c$ ) of this zone (close to room temperature). Skyrmionic bubbles are subject to lots of international studies. They are potentially attractive for memories or logic devices development. The key result of this PhD was to show the strong dependence of magnetic skyrmionic bubbles with electric field application. The full electrical switch of these objects has been achieved, due to the strong electrical control of the different magnetic properties. These electric-field assisted magnetisation reversal/skyrmionic bubbles nucleation studies were performed at room temperature, which is compatible with applications.

**Keywords :** Spintronics, nanomagnetism, magnetoelectric coupling, skyrmionic bubbles, oxidation wedge,  $Pt/Co/AlO_x$ , Perpendicular Magnetic Anisotropy ( $PMA$ ), weak  $T_c$ , Dzyaloshinskii-Moriya interaction ( $DMI$ )



# Introduction

Le stockage de données et la rétention d'informations sont au cœur d'un grand nombre de travaux de recherche dans le domaine du nanomagnétisme et de ses applications technologiques. La course à la miniaturisation des bits d'informations (nano-aimants, dans le but de maximiser la densité de stockage) amène à un trilemme concernant l'enregistrement magnétique : rapidité d'écriture, stabilité thermique et rapidité de lecture sont les trois critères à optimiser simultanément. En effet, une réduction des dimensions des nano-aimants réduit la stabilité thermique de l'orientation de l'aimantation de ces bits. Une orientation de l'aimantation stable est décrite par l'énergie d'anisotropie magnétique  $E_{MAE}$ . Une perte d'information peut donc avoir lieu suite à un renversement de cette aimantation lorsque cette valeur d'énergie n'est pas suffisante face aux fluctuations thermiques. Une valeur d'anisotropie suffisante est donc nécessaire pour obtenir un stockage de l'information suffisamment long. Il a été démontré que pour un temps de rétention typique de 10 ans, l'énergie d'anisotropie  $E_{MAE}$  devait être supérieure à  $45k_B T$  (avec  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température d'utilisation de l'appareil, soit la température ambiante) [1]. C'est ici qu'une contradiction apparaît. En effet de fortes valeurs d'anisotropie impliquent aussi une écriture magnétique des bits d'information très difficile : de fortes anisotropies requièrent de fortes valeurs de champs magnétiques appliqués pour pouvoir renverser de l'aimantation lors de l'écriture du nano-aimant. Il a été démontré que l'application d'un champ électrique sur ce type de structure pouvait abaisser la valeur d'anisotropie, et donc faciliter le processus d'écriture magnétique tout en conservant une bonne stabilité thermique (assistance électrique) lorsque le champ est réduit.

C'est dans ce contexte que ce projet de thèse a vu le jour. Il a été réalisé en collaboration entre l'Institut Néel (CNRS), dans l'équipe Micro et Nanomagnétisme (MNM), et le laboratoire Spintec (CEA/INAC), sous la direction de Anne Bernard-Mantel, Hélène Béa, Claire Baraduc et Jan Vogel. Il porte sur le contrôle par champ électrique des propriétés magnétiques du cobalt ultra-mince, ou effet magnétoélectrique. La possibilité de modifier l'état magnétique d'un matériau d'une manière autre que par l'utilisation d'un champ magnétique extérieur a été l'objet de très nombreuses études au cours de ces dix dernières années. Une étude intéressante a même reporté le nombre de publications incluant le terme "magnétoélectrique" en fonction de l'année de publication [2] et nous remarquons que l'allure obtenue est exponentielle (cf fig. 1), ce qui témoigne d'un intérêt grandissant pour mieux comprendre cet effet. La course à des effets de plus en plus importants pour des matériaux compatibles avec les applications des technologies de l'information a donc été lancée.

Le but de cette thèse a été de démontrer qualitativement et quantitativement quels étaient les paramètres magnétiques touchés par l'application d'un champ électrique dans une structure typique de  $Pt/Co/AlO_x$  présentant une couche de cobalt ultra fine ( $\leq 0,6nm$ ). Nous verrons alors que nous avons été en mesure d'obtenir un très fort couplage magnétoélectrique pour des épaisseurs de  $Co$  frôlant la monocouche, et ce, sans dégrader le film en question (les effets étant

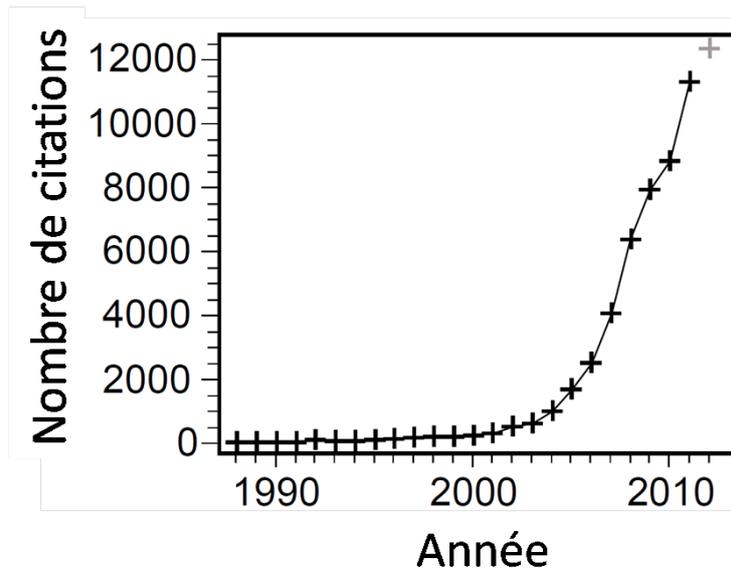


FIGURE 1: Nombre de publications incluant le mot "magnétoélectrique" depuis les 25 dernières années. Figure reportée de [2].

réversibles). Ces forts effets de champ électriques ont ensuite été mis à profit dans le contrôle de la nucléation de textures magnétiques particulières, des skyrmions magnétiques, observés dans certaines régions de nos échantillons.

La structure du manuscrit sera comme suit :

- **Chapitre 1** : Ce chapitre est dédié à l'explication de tous les concepts utiles à la bonne compréhension de la suite du manuscrit. Il se divise en trois thèmes. Premièrement, il détaillera, entre autres, les termes d'ordres magnétiques, ainsi que les différentes grandeurs et énergies caractéristiques d'un matériau magnétique. Puis une description de la structure mesurée y sera donnée. Enfin, un historique sur la notion de domaines périodiques et de leurs dimensions sera présenté.
- **Chapitre 2** : Le second chapitre, très bibliographique, est aussi divisé en deux. Il présentera tout d'abord un historique détaillé des nombreux effets de champ électrique obtenus dans les métaux, ainsi qu'une explication de l'origine de cet effet. Ensuite, une description et un historique rapide sur la création de texture magnétique chirale (skyrmions) sera donnée.
- **Chapitre 3** : Le troisième chapitre sera dédié à toutes les techniques expérimentales de dépôts, et de caractérisation que j'ai utilisées au cours de ma thèse. Un accent particulier sera porté sur les techniques dominantes de mon travail de thèse, et une explication de leur fonctionnement sera donnée.
- **Chapitre 4** : Le chapitre 4 est le chapitre dédié à la caractérisation complète et fine de nos structures de  $Pt/Co/AlO_x$ . Nous verrons qu'un gradient d'oxydation à l'interface  $Co/AlO_x$  permet d'obtenir une variation continue des propriétés magnétiques et donc de cibler des régions de l'échantillon où la variation de ces paramètres présente un intérêt tout particulier dans la recherche d'un effet de champ électrique fort.

- **Chapitre 5** : Le chapitre 5 est le chapitre présentant les résultats importants de la thèse. Une étude poussée sur une zone très fine de l'échantillon y sera présentée. Et les effets sur les différents paramètres du système, obtenus lors de l'application d'un champ électrique sur cette zone particulière, seront détaillés. Nous terminerons en détaillant le modèle analytique qui aura été utile à la bonne compréhension des observations que nous avons faites sur le contrôle des bulles skyrmioniques présentes dans cette zone.

Nous terminerons par une **Conclusion générale** de nos observations principales et des résultats clés de ce travail de thèse et les perspectives de mesures à réaliser à court terme.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Généralités sur le magnétisme et sur le système <math>Pt/Co/Al_2O_3</math></b>	<b>11</b>
1.1	Quelques notions : ordre magnétique, couplage spin-orbite et magnétisme itinérant	11
1.1.1	Ordre et matériaux magnétiques	11
1.1.2	Couplage spin-orbite	14
1.1.3	Magnétisme itinérant dans les métaux de transition	17
1.2	Grandeurs caractéristiques des matériaux ferromagnétiques	18
1.2.1	Propriétés intrinsèques	18
1.2.2	Propriétés extrinsèques	20
1.2.3	Exemple du cobalt, matériau ferromagnétique à température ambiante	20
1.3	Énergies magnétiques	21
1.3.1	Énergie d'échange	21
1.3.2	Energie Zeeman	25
1.3.3	Energie dipolaire	25
1.3.4	Energie d'anisotropie magnétocristalline	26
1.4	Multicouches ultrafines de $Pt/Co/Al_2O_3$ et mesure de l'anisotropie magnétique perpendiculaire	27
1.4.1	Contexte : Expression de $K_{eff}$ dans le cas des films ultra-minces	27
1.4.2	Origine de l'anisotropie perpendiculaire magnétique dans les systèmes $Pt/Co/Al_2O_3$	29
1.4.3	Détermination expérimentale de l'anisotropie effective $K_{eff}$	32
1.5	Domaines magnétiques	35
1.5.1	Idée de domaines magnétiques	35
1.5.2	Modèles utilisés pour la stabilisation de domaines périodiques en labyrinthe : historique	37
<b>2</b>	<b>État de l'art : effets de champs électrique et stabilisation de skyrmions</b>	<b>43</b>
2.1	Modifications des propriétés magnétiques : mises en évidence expérimentales	43
2.1.1	Contexte de la spintronique	43
2.1.2	Premières mises en évidence expérimentales	45
2.1.3	Effets observés sur des couches minces de types ferromagnétique/oxyde	46
2.1.4	Renversement assisté par champ électrique : mises en évidence expérimentales	55
2.2	Effet de champ électrique : un effet de surface	59
2.3	Effet de champ électrique : origine	61
2.3.1	Accumulation de charges : un effet de capacité	61
2.3.2	Migrations ioniques	65
2.3.3	Classification	66
2.4	Stabilisation de skyrmions	69
2.4.1	Texture magnétique particulière	69

2.4.2	Premières mises en évidence dans les matériaux massifs - 2009 . . . . .	71
2.4.3	Mises en évidence dans les couches minces épitaxiées - 2011 . . . . .	71
2.4.4	Mise en évidence dans les couches minces pulvérisées - 2015 . . . . .	72
<b>3</b>	<b>Techniques expérimentales</b>	<b>77</b>
3.1	Méthode de dépôt des films minces . . . . .	77
3.1.1	Méthode de dépôt des couches minces magnétiques par pulvérisation cathodique . . . . .	77
3.1.2	Méthode de dépôt du diélectrique par <i>ALD</i> . . . . .	79
3.2	Méthodes utilisées pour la micro-fabrication des échantillons . . . . .	82
3.2.1	Photolithographie . . . . .	82
3.2.2	Méthodes de développement . . . . .	83
3.3	Méthodes de caractérisation utilisées . . . . .	84
3.3.1	Imagerie et cycles en microscopie à effet Kerr - configuration polaire . . . . .	85
3.3.2	Mesure quantitative : magnétomètre VSM-SQUID (à échantillon vibrant) . . . . .	89
3.3.3	Mesure de magnéto-transport . . . . .	95
<b>4</b>	<b>Caractérisation magnétique de films ultraminces de <math>Pt/Co/AlO_x</math></b>	<b>101</b>
4.1	Utilisation et intérêts d'une structure avec gradient d'épaisseur . . . . .	101
4.2	Modification des propriétés magnétiques le long du gradient d'oxydation - caractérisation régulière de l'échantillon en coin . . . . .	103
4.2.1	Cycles réguliers en Kerr polaire avec champ magnétique perpendiculaire appliqué . . . . .	103
4.2.2	Evolution de $M_s \cdot t$ , $M_r \cdot t$ et de $T_c$ . . . . .	105
4.2.3	Mesure du champ d'anisotropie et déduction de l'anisotropie effective . . . . .	114
4.2.4	Modification de la vitesse de propagation des parois . . . . .	119
4.3	Conclusions . . . . .	120
<b>5</b>	<b>Mise en évidence de domaines apparaissant spontanément dans la zone ultra-fine - Et leur contrôle électrique</b>	<b>123</b>
5.1	Observation microscopique des domaines . . . . .	123
5.1.1	Observation d'une zone de désaimantation de domaines en labyrinthe, par effet Kerr . . . . .	123
5.1.2	Transition de type réorientation de spin . . . . .	124
5.2	Caractérisation précise de cette zone . . . . .	127
5.2.1	Estimation du profil d'aimantation et du champ coercitif ( $H_c$ ) à température ambiante . . . . .	127
5.2.2	Mesures régulières du champ de saturation hors plan ( $H_s_{OOP}$ ) . . . . .	131
5.2.3	Mesure du champ d'anisotropie et déduction de l'anisotropie effective $K_{eff}$ . . . . .	132
5.2.4	Influence de la variation de $T_c$ sur la réorientation . . . . .	134
5.2.5	Extraction de la taille des domaines en fonction de la position sur l'échantillon . . . . .	137
5.3	Effets de champ électrique sur films ultra-minces . . . . .	144
5.3.1	Montage pour l'application du champ électrique . . . . .	144
5.3.2	Effet direct sur les domaines en labyrinthe . . . . .	145
5.3.3	Effet sur les bulles skyrmioniques : Contrôle de leur nucléation . . . . .	157
5.4	Conclusions . . . . .	164
<b>A</b>	<b>Déduction de <math>M_s</math> des mesures VSM – SQUID à basses températures</b>	<b>171</b>

<b>B</b>	<b>Extraction de la constante d'échange <math>A_{ex}</math> le long du gradient d'oxydation</b>	<b>173</b>
<b>C</b>	<b>Vérification de l'allure de la variation de <math>M_s</math> <math>l_f</math> grâce aux mesures de transport (EHE)</b>	<b>177</b>
<b>D</b>	<b>Méthodes d'extraction du champ d'anisotropie en utilisant les mesures EHE et en Kerr polaire avec un champ planaire</b>	<b>179</b>
<b>E</b>	<b>Évolution du champ de saturation planaire</b>	<b>185</b>
<b>F</b>	<b>Modification de la vitesse de propagation des parois</b>	<b>187</b>
<b>G</b>	<b>Transition de type réorientation de spin</b>	<b>191</b>
	G.1 Phase smectique - Domaines stationnaires . . . . .	191
	G.2 Phase liquide fluctuante . . . . .	191
	G.3 Phase paramagnétique désordonnée . . . . .	193
	G.4 Réorientation planaire ? . . . . .	193
	G.5 Facteurs de structure et bilan . . . . .	194
<b>H</b>	<b>Possibilité de réorientation planaire ?</b>	<b>197</b>
<b>I</b>	<b>Cycles en Kerr polaire avec champ magnétique perpendiculaire sur l'électrode <math>i</math> du chapitre 5</b>	<b>201</b>
<b>J</b>	<b>Loi générale de calcul de propagation des erreurs de mesure</b>	<b>203</b>
	J.1 Dédution de la valeur de l'erreur absolue : $\Delta L$ . . . . .	203
	J.2 Dédution de la valeur de l'erreur absolue : $\Delta\sigma_\omega$ . . . . .	204
	J.3 Dédution de la valeur de l'erreur absolue : $\Delta D$ . . . . .	205
<b>K</b>	<b>Comparaison directe des mesures en position et et champ électrique</b>	<b>207</b>



# Chapitre 1

## Généralités sur le magnétisme et sur le système $Pt/Co/Al_2O_3$

Ce chapitre rappellera les différentes notions de magnétisme qui seront utiles à la compréhension de ce manuscrit. L'origine du magnétisme dans la matière ainsi qu'une précision sur la notion d'ordre magnétique puis les différentes grandeurs utiles à la description du film seront d'abord données. Puis, nous listerons les différents termes d'énergie en compétition dans un tel système. Nous traiterons ensuite des notions récurrentes dans les chapitres suivants, telles que l'origine d'une anisotropie magnétique perpendiculaire (*PMA*) dans les couches ultra-fines ; ou encore le modèle de renversement cohérent de l'aimantation d'un système ; et nous finirons par décrire l'historique du travail sur l'expression des dimensions de domaines magnétiques périodiques en fonction de l'épaisseur du film qui sera primordial pour la bonne compréhension du système étudié au chapitre 5.

### 1.1 Quelques notions : ordre magnétique, couplage spin-orbite et magnétisme itinérant

Premièrement nous réaliserons un bref historique des matériaux magnétiques puis nous préciserons les différents types d'états magnétiques rencontrés au cours de ma thèse. Nous décrirons aussi la notion de couplage spin-orbite intervenant dans nos systèmes, en partie responsable de certains termes d'énergie (principalement des termes d'énergie d'échange anti-symétrique, d'anisotropie magnétocristalline et d'interface, qui seront décrites dans les parties suivantes). Nous finirons par définir la notion de magnétisme itinérant, considérée dans le cas des métaux de transition  $3d$  (*Fe*, *Ni* et *Co*).

#### 1.1.1 Ordre et matériaux magnétiques

##### Historique

La compréhension des matériaux magnétiques s'est faite de manière très progressive au cours de l'histoire. En effet, nous n'avons que peu d'informations concernant la première mise en évidence de propriétés magnétiques d'un matériau, mais le premier rapport écrit date des années antérieures à 645 *av J. - C.*, date de la mort de l'auteur chinois Guanzhong, qui avait été le premier à mentionner par écrit l'existence de pierres d'aimant [3].

La mise à profit de ces pierres d'aimant dans les années suivantes (vers -200 *av J. - C.*) a permis de réaliser le premier objet obéissant aux lois du magnétisme. Cet ancêtre de la boussole,

alors appelé "cuillère directive" était une pierre d'aimant naturelle, taillée en forme de cuillère et capable de s'aligner selon l'axe nord-sud [3].

L'état de connaissance du phénomène n'est que peu développé au XVIII<sup>ème</sup> siècle lors de l'écriture de l'encyclopédie de Diderot et d'Alembert. La définition alors adoptée pour les aimants relate des principales observations de l'époque. La notion de pôles magnétiques y est introduite, ainsi que l'attraction, ou bien l'induction de moment magnétique (alors appelée vertu communicative), se manifestant entre deux corps. Une des définitions du terme "aimant" date de ces observations. Il est alors dit d'un aimant que c'est une "substance qui a reçu la propriété d'attirer le fer, en lui conférant des qualités directives et attractives".

Il faudra donc attendre le XIX<sup>ème</sup> pour venir conforter les prédictions faites par Diderot et D'Alembert sur la potentialité d'un lien direct entre l'électricité et les matériaux magnétiques. En 1820, Hans-Christian Oersted montra que la circulation d'un courant dans un fil conducteur considéré comme infini permettait d'induire un champ magnétique orthoradial. Cette expérience fut la première mise en évidence de la connexion directe entre l'électricité et le magnétisme. Puis Ampère prit le relai et réussit à montrer le phénomène avec une géométrie inversée : une boucle circulaire de courant pouvait engendrer un champ magnétique. Ces travaux ont donc été à la base du développement des théories de l'électromagnétisme, dont les équations ont été établies en 1864 par Maxwell. Enfin, à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle, les travaux de Curie et de Weiss posent les bases de la compréhension des matériaux magnétiques.

## Ordre magnétique

Chacun des atomes d'un matériau est responsable de ses propriétés magnétiques. En particulier les électrons qui, par rapport au noyau, sont les principaux responsables de l'existence d'un moment magnétique. En effet, la trajectoire<sup>1</sup> de chacun des électrons autour du noyau peut être vue comme une boucle de courant induisant un moment magnétique orbitalaire  $\mu_l$ . De plus, il a été postulé (et mesuré) que chacun de ces électrons porte un moment magnétique intrinsèque, appelé moment de spin  $\mu_S$ <sup>2</sup>, et cela permet d'ajouter une contribution supplémentaire au magnétisme de l'atome. La somme du moment magnétique orbitalaire et du moment magnétique de spin pour tous les électrons, donne le moment magnétique  $\vec{m}$  porté par l'atome<sup>3</sup>.

L'aimantation  $\vec{M}$  d'un corps magnétique représente la densité volumique de ces moments magnétiques :  $\vec{M} = 1/V \sum_{i=1}^n \vec{m}_i$ , avec  $V$  le volume du matériau considéré et  $n$  le nombre d'atomes dans ce volume. Cette grandeur est donc propre au matériau étudié. Elle est exprimée en  $A/m$ . L'aimantation dépendra du champ magnétique  $\vec{H}$  auquel sera soumis le milieu. Cette dépendance permet de définir la susceptibilité magnétique  $\chi$  s'écrivant comme :

$$\chi = \frac{M}{H}, \quad (1.1)$$

dans le cas de courbes d'aimantation représentant  $\vec{M}$  en fonction du champ appliqué  $\vec{H}$  présentant une réponse linéaire en champ magnétique (cf fig. 1.1 a et b). On parlera alors de matériaux paramagnétiques pour  $\chi > 0$  et diamagnétiques pour  $\chi < 0$ . A l'inverse, dans le cas d'une réponse qualifiée de non-linéaire en champ (cf fig. 1.1 c pour  $T_3$ ), la susceptibilité s'écrit alors :

$$\chi = \left( \frac{\delta M}{\delta H} \right)_{H=0}. \quad (1.2)$$

Nous verrons que ce type de courbe d'aimantation est propre aux matériaux ferromagnétiques.

1. Appelée orbitale

2. Avec  $\mu_S = \pm\mu_B$ , et  $\mu_B$  le magnéton de Bohr

3. Nous ferons ici la distinction entre le moment magnétique atomique total  $\mu_T = \sum_{\text{atomes}} \mu_l + \mu_S$  et le moment magnétique micromagnétique  $\vec{m}$ . Cela consiste à passer d'une représentation discrète, sommant la contribution des atomes de chaque site, à une représentation continue

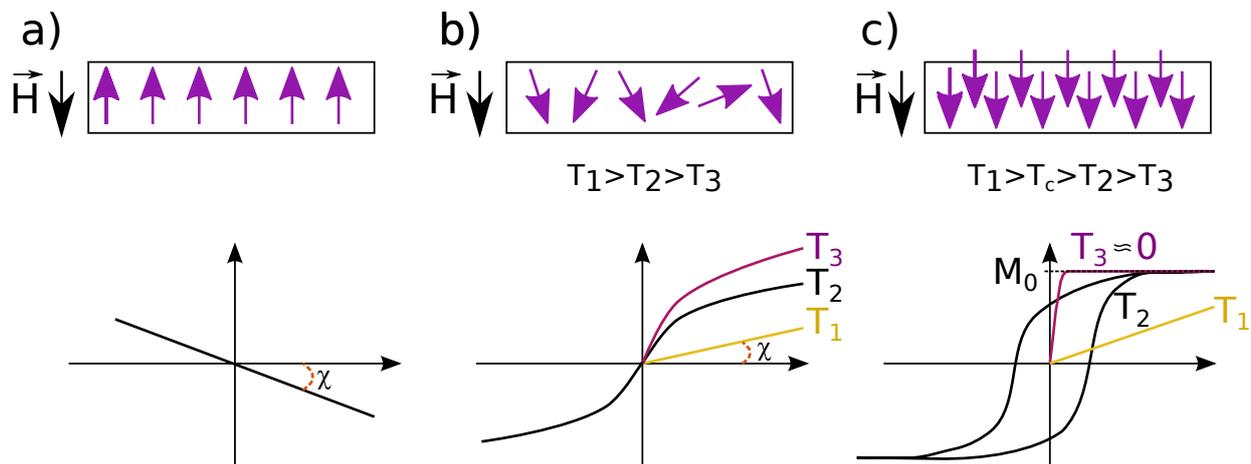


FIGURE 1.1: Représentation schématique de l'aimantation  $\vec{M}$  (en violet) et courbes d'aimantation  $M(H)$  selon la température de mesure, pour un matériau

- a) Diamagnétique (avec mise en évidence de la pente donnant la valeur de la susceptibilité  $\chi$ ),  
 b) Paramagnétique,  
 c) Ferromagnétique.

Ces différents ordres magnétiques ont été introduits pour la première fois après les expériences de Faraday au  $XIX^{\text{ème}}$  siècle pour "mesurer le magnétisme des substances" et ont été précisés au  $XX^{\text{ème}}$  par Pierre Curie. Nous pouvons donc préciser ces trois principaux types de magnétisme, et définir la notion d'ordre magnétique dans les matériaux :

- Diamagnétiques : Les matériaux diamagnétiques possèdent une valeur de susceptibilité  $\chi$  négative aux alentours de  $-10^{-5}$ , qui est, en général, indépendante de la température de mesure. Ces matériaux ont la capacité de générer un champ magnétique opposé au champ appliqué lors de la mesure. L'origine de ce phénomène vient de la modification de la trajectoire des électrons autour du noyau atomique. Cela change le courant induit et donc le moment magnétique. Dans le cas de matériaux possédant aussi des atomes magnétiques, ces forces sont généralement très faibles devant le caractère ferro ou paramagnétique de ces systèmes. Les composés diamagnétiques purs (cf fig. 1.1 a) se composent, quant à eux, uniquement d'atomes non magnétiques. Ces matériaux à caractère diamagnétique fort, comme le graphite pyrolytique peuvent être amenés à léviter au contact d'aimants permanents. Ce type de démonstration est souvent réalisé dans les projets de vulgarisation scientifique auxquelles j'ai pu participer au cours de ma thèse. Enfin, un caractère diamagnétique très fort est généralement assimilé aux matériaux supraconducteurs, pour lesquels  $\chi = -1$ . Leur propriété générale est donc la capacité à expulser les champs magnétiques, en particulier lorsqu'ils sont définis sous forme de boucle. Nous préciserons ce caractère au chapitre 3, avec la description de la technique de mesure *SQUID*.
- Paramagnétiques : Dans les matériaux paramagnétiques, les atomes ont chacun un moment magnétique. Ces moments s'orientent parallèlement à un champ magnétique appliqué par effet Zeeman (cf définition de l'interaction Zeeman en section 1.3.2) (cf fig. 1.1 b). L'agitation thermique empêche d'orienter tous les moments selon le champ. Cette aimantation restaurée est donc d'autant plus faible que la température est élevée, selon la loi de Curie [3]. La susceptibilité est alors fortement dépendante de la température. Elle est considérée infinie à température nulle, puis décroît très rapidement avec l'augmentation de la température. Ces matériaux possèdent une susceptibilité magnétique positive de l'ordre de  $10^{-3}$  à  $10^{-5}$ .

Selon les cas de mesures (et généralement à basse température), la courbe d'aimantation d'un matériau paramagnétique n'est pas strictement linéaire du fait de l'existence d'un régime de saturation à fort champ magnétique appliqué (plusieurs teslas, cf fig. 1.1 b pour  $T_2$  et  $T_3$  et chapitre 4).

- Ferromagnétiques : Les matériaux ferromagnétiques possèdent une susceptibilité forte<sup>4</sup> et des moments magnétiques ordonnés localement. Contrairement aux matériaux paramagnétiques, cet ordre local est atteint même sans champ magnétique appliqué : l'alignement des moments magnétiques est favorisé par l'interaction d'échange qui sera décrite dans les paragraphes suivants.

A nouveau la susceptibilité dépend fortement de la température d'observation. En effet, pour des températures supérieures à une température caractéristique, appelée température de Curie,  $T_c$ , la dépendance de la susceptibilité en température est similaire à celle d'un matériau paramagnétique, selon la loi de Curie-Weiss, et l'agitation thermique a une grande importance.  $T_c$  est donc la température à laquelle l'ordre magnétique s'établit : pour  $T > T_c$  le matériau est paramagnétique, et pour  $T < T_c$  il est ferromagnétique. En-dessous de  $T_c$  cet alignement des moments magnétiques permet de mettre en évidence une aimantation spontanée  $M_{spont}$ , qui sera décrite dans le paragraphe suivant. A température nulle, cette aimantation atteint sa valeur maximale  $M_0$  (cf fig. 1.1 c pour  $T_3$ ). Seulement trois éléments purs, qui sont des métaux de transition  $3d$ , sont décrits comme ferromagnétiques à température ambiante ( $Fe$ ,  $Co$  et  $Ni$ ).

Nous pouvons faire des distinctions au sein même de cette famille de matériaux ferromagnétiques. En effet, certains matériaux ferromagnétiques ne sont pas spontanément aimantés à champ nul, on peut donc les décrire comme désaimantés. Cette classe de matériaux (communément appelés les matériaux doux) doit son comportement à la division en domaines magnétiques de l'intérieur du système, appelés domaines de Weiss<sup>5</sup>. Chaque domaine possède une aimantation spontanée, cependant l'aimantation totale résultante est nulle, et l'application d'un champ est alors nécessaire pour orienter tous les domaines dans la même direction. Les matériaux ferromagnétiques durs au contraire, possèdent une aimantation spontanée, même en l'absence de champ magnétique appliqué.

Nous avons décrit les types d'ordres magnétiques que nous avons rencontré lors de nos mesures. Notons tout de même que d'autres comportements ont été mis en évidence dans la première moitié du  $XX^{eme}$  siècle par Louis Néel tels que l'antiferromagnétisme ou encore le ferrimagnétisme. Ils ne seront pas étudiés dans ce manuscrit.

La mise en évidence de domaines magnétique par Pierre Weiss a fait progresser les études à l'échelle locale des phénomènes magnétiques. Cette notion de domaines ainsi que de parois de domaines sera décrite dans les sections suivantes.

## 1.1.2 Couplage spin-orbite

Pour définir ce couplage, nous utiliserons l'expression du moment atomique total  $\vec{\mu}_T$  introduit dans le paragraphe précédent. L'interaction spin-orbite se définit comme l'interaction intervenant entre le moment intrinsèque de spin  $\vec{\mu}_S$  et le moment magnétique orbitaire  $\vec{\mu}_l$  définis au même paragraphe.

4. Pouvant aller jusqu'à  $10^4$

5. Du nom de Pierre Weiss qui les avait mis en évidence au début du  $XX^{eme}$  siècle

## Vision classique

Nous pouvons tout d'abord décrire ce phénomène d'un point de vue classique. En se positionnant dans le référentiel de l'électron, le mouvement du noyau atomique chargé peut être perçu comme une boucle de courant, générant un champ magnétique  $\vec{B}_{SO}$ , qui va interagir avec le moment magnétique de spin  $\vec{\mu}_S$  de l'électron. Cette interaction induit une énergie de type Zeeman (qui sera décrite en section 1.3) qui peut alors s'écrire :  $E_{SO} = -\vec{\mu}_S \cdot \vec{B}_{SO}$ . Cette vision classique nous permet déjà de dire que cette interaction risquera d'être plus forte pour des atomes dont la charge du noyau  $Z$  sera élevée. Ceci est le cas pour les atomes lourds tels que *Pt*, *Ta*, *Bi*...

## Développement quantique relativiste

Dans une approche relativiste, l'électron se déplaçant avec une vitesse  $\vec{v}$  dans le champ électrique  $\vec{E}$  du noyau verra un champ magnétique  $\vec{B} = 1/c \vec{E} \times \vec{v}$ , avec  $c$  la vitesse de la lumière. Ce champ électrique agira sur le moment magnétique de l'électron.

En développant maintenant ce principe de manière analytique (en considérant un effet quantique relativiste), nous allons mettre en évidence le fait que cette interaction induit un couplage fort, et donc une importante différence d'énergie, dans le cas d'éléments lourds (numéro atomique  $Z$  élevé).

En présence d'une interaction spin-orbite, l'Hamiltonien décrivant l'énergie de l'atome (noyau + électrons) va être modifié, et comprendra le terme usuel dû aux interactions de Coulomb dans ce type de système chargé  $\hat{H}_0$ , ainsi qu'un terme provenant de l'interaction de spin-orbite  $\hat{H}_{SO}$  :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{SO} = \hat{H}_0 - \frac{1}{4m^2c^2} (\hat{\sigma}\hat{p}) |E - V| (\hat{\sigma}\hat{p}), \quad (1.3)$$

avec  $\hat{p}$  le vecteur quantité de mouvement de l'électron ;  $\hat{\sigma}$  la matrice de Pauli ;  $m$  la masse de l'électron ;  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide ;  $V$  est le potentiel induit par le noyau atomique chargé positivement et son électron en mouvement ; et  $E$  est l'énergie du système de base, sans considérer la perturbation introduite par l'interaction de type spin-orbite. A partir de là, nous pouvons distinguer les termes qui sont liés uniquement à la répulsion Coulombienne<sup>6</sup> et les termes d'énergie supplémentaires liés à l'interaction spin-orbite. Ces termes-là mettent en relation une dépendance du potentiel  $V$  avec le mouvement de l'électron  $\hat{p}$ . Puis, il a été démontré que l'expression du terme dû à l'interaction spin-orbite peut s'écrire :

$$\hat{H}_{SO} = \frac{\hbar}{4m^2c^2} \hat{\sigma} (\nabla \vec{V} \times \hat{p}), \quad (1.4)$$

avec  $\hbar$  la constante réduite de Planck. En considérant le potentiel comme un potentiel central et avec la trajectoire d'un électron homogène autour du noyau atomique chargé, on peut s'attendre à une décroissance du potentiel en  $1/r$ , avec  $r$  la distance électron-noyau. On aura donc :  $\nabla \vec{V} = \frac{\vec{r}}{r} \frac{dV}{dr}$  et l'on pourra réécrire  $\hat{H}_{SO}$  comme :

$$\vec{H}_{SO} = \frac{\hbar}{4m^2c^2} \frac{1}{r} \frac{dV}{dr} (\hat{\sigma} \cdot \hat{L}), \quad (1.5)$$

avec  $\hat{L} = \vec{r} \times \hat{p}$  le moment orbital angulaire total du système, directement lié au moment magnétique orbital  $\mu_l$  de l'électron. De même  $\hat{S}$  est défini comme le moment angulaire intrinsèque de spin total du système et est directement lié au moment magnétique de spin  $\mu_S$ . Ces

6. Qui sont les termes variant seulement avec la valeur du potentiel  $V$

valeurs obéissent aux lois de la quantification et permettent de décrire le système. Cependant, ces nombres quantiques ne peuvent être étudiés séparément dans le cas du couplage de type spin-orbite. Un nouveau nombre quantique  $\hat{J}$  est alors défini comme le moment cinétique orbitaire total et sera lié au moment magnétique total  $\mu_T$  défini à la section 1.1 <sup>7</sup>.

En remarquant que  $\hat{S} = \hbar/2 \hat{\sigma}$ , nous pouvons simplifier le terme d'énergie apporté par l'interaction de spin-orbite comme :

$$\hat{H}_{SO} = \xi \hat{S} \cdot \hat{L}, \quad (1.6)$$

avec :  $\xi = \frac{1}{2m^2c^2r} \frac{dV}{dr}$  la grandeur définissant le couplage spin-orbite. Elle peut être négative ou positive selon le gradient de potentiel.

L'effet principal déduit du couplage spin-orbite est une levée de dégénérescence des états électroniques (correspondants aux différentes orbitales). En effet, selon les règles de remplissage de Pauli, on peut trouver deux électrons sur une même orbite, mais ils possèdent alors deux états de spin différents. Le couplage spin-orbite apporte une variation d'énergie supplémentaire au système  $\Delta E_{SOC}$  qui est perçue comme un décalage en énergie des orbitales alors équivalentes.

Nous allons résumer quelques étapes de calcul permettant de déduire la valeur de  $\Delta E_{SOC}$ . Rappelons pour cela que la base  $|n\rangle$  permet de décrire les fonctions d'onde, et qu'elle peut aussi s'écrire :  $|n, l, m_l, s\rangle$ . Nous avons aussi déjà mentionné que  $\hat{J} = \hat{L} + \hat{S}$ . Finalement, en utilisant les propriétés des nombres quantiques  $\hat{L}^2|n\rangle = L(L+1)\hbar^2|n\rangle$  (de même pour  $\hat{J}$  et pour  $\hat{S}$ ) :

$$\begin{aligned} \Delta E_{SOC} &= \frac{1}{2m^2c^2} \langle n | \frac{1}{r} \frac{dV}{dr} \frac{\hat{J}^2 - \hat{S}^2 - \hat{L}^2}{2} | n \rangle \\ &= \frac{Z^4 \hbar^2 e^2}{2m^2 c^2 a_0^3} f(J; L; S; n) \end{aligned}$$

$Z$  est le numéro atomique de l'atome ;  $a_0$  est le rayon de Bohr. Et  $f$  est une constante regroupant une constante dépendante des valeurs des trois nombres quantiques  $J, L$  et  $S$  et qui résulte du calcul  $\frac{\hat{J}^2 - \hat{S}^2 - \hat{L}^2}{2} |n\rangle$  et le quotient  $\frac{1}{n^3 L(L+1)(L+1/2)}$ .  $f$  est dépendante des trois nombres  $J, L$  et  $S$ , mais aussi du nombre quantique principal  $n$ .

## A retenir

Cette dépendance en  $Z^4$  de la variation d'énergie apportée par l'interaction spin-orbite vient bien confirmer la première hypothèse déduite de la vision classique du système : ce couplage est très fort pour les matériaux lourds. Nous remarquons aussi que ce couplage est fonction uniquement du numéro atomique  $Z$  du matériau et des valeurs de moment angulaire orbital, de spin et cinétique totaux de l'atome, ainsi que de la couche électronique occupée par l'électron (nombre quantique principal  $n$ ).

Notons que cette interaction est fondamentale et influencera beaucoup les termes d'énergies magnétiques que nous décrirons en section 1.3. En effet, elle prend toute son importance en présence d'interfaces (qui seront au cœur de l'étude de notre système décrit en section 1.4 ainsi qu'au chapitre 4). Par exemple, dans le cas d'une interface entre un matériau ferromagnétique

7.  $\mu_T = \mu_l + \mu_s = \gamma(\hat{L} + 2\hat{S}) = \gamma(\hat{J} + \hat{S})$ , avec  $\gamma$  le facteur gyromagnétique de l'électron, défini par :  $\gamma = \frac{-e}{2m}$

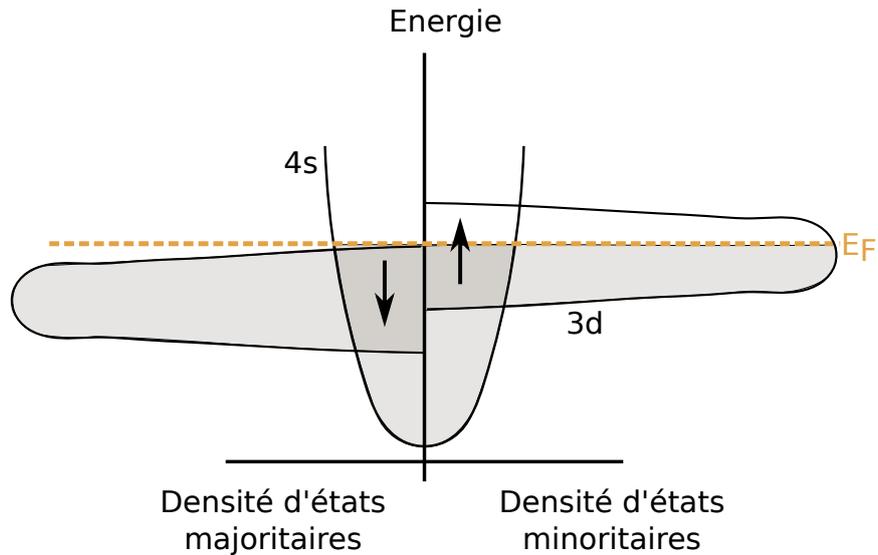


FIGURE 1.2: Représentation schématique du remplissage des bandes (densité d'états électroniques) d'un métal 3d ferromagnétique "fort" (donc possédant une bande de spin majoritaire pleine).

de transition 3d et un métal lourd, l'hybridation des orbitales à l'interface peut induire une interaction spin-orbite entre le métal lourd et le matériau de transition, et donc induire des moments magnétiques au sein même du métal lourd.

Cette grandeur étant aussi une grandeur très locale, la force de l'interaction peut varier au sein du matériau d'un site atomique à un autre.

### 1.1.3 Magnétisme itinérant dans les métaux de transition

La vision que nous avons utilisée pour décrire les différents types de magnétisme (en section 1.1.1) s'avère être très localisée. A l'échelle de l'atome, nous nous représentons les électrons comme occupant les orbitales localisées proches du noyau atomique. Nous avons vu que cette vision localisée est aussi utile pour décrire le phénomène de couplage de spin-orbite.

Les métaux de transition (*Co*, *Fe*, ou *Ni*), les électrons se situent dans des bandes d'énergie, qui sont obtenues par le recouvrement des orbitales des différents atomes du solide. Attention cette propriété de délocalisation des électrons s'applique surtout pour les électrons résidant sur les couches les plus extérieures. Les électrons des couches intérieures resteront localisés près du noyau atomique.

Ces électrons des couches externes sont ceux contribuant aux propriétés électriques du matériau, comme la conduction d'un courant. Ils occupent les bandes disponibles jusqu'à un certain niveau d'énergie, le niveau de Fermi  $E_F$ . Ce niveau se situe sur une bande partiellement occupée par les électrons, appelée bande de conduction. On parle alors d'électrons itinérants, car les électrons proches du niveau de Fermi peuvent être partagés entre les atomes. Dans le cas des métaux de transition 3d, les énergies des bandes 3d et 4s sont très proches, la bande de conduction est donc le résultat d'une hybridation entre ces bandes (cf fig. 1.2). De ce fait, les électrons sont polarisés en spin.

En effet, le décalage en énergie des bandes selon le spin induit une densité différente de spins "haut" ( $\mu_S \propto +\mu_B$ ) et "bas" ( $\mu_S \propto -\mu_B$ ) à une énergie donnée. Nous parlerons alors de spins minoritaires et de spins majoritaires (pour lesquels un remplissage plus important des bandes

$3d - 4s$  est observé). Plus cette différence de remplissage entre les deux états de spins est importante, plus le moment de spin induit (donc l'aimantation) sera important.

Notons que dans la plupart des cas, le caractère magnétique d'un matériau est une combinaison des modèles d'électrons localisés et itinérants. Un bon compromis consiste alors à imaginer les électrons ni entièrement délocalisés (magnétisme itinérant), ni entièrement fixés sur une orbitale (magnétisme localisé), mais plutôt comme sautant d'un site atomique à un autre à une fréquence caractéristique.

## 1.2 Grandeurs caractéristiques des matériaux ferromagnétiques

Nous allons maintenant donner les principales grandeurs utiles à la description d'un matériau ferromagnétique. Pour cela, nous décrirons une courbe d'aimantation typique,  $\vec{M}$  en fonction du champ magnétique  $\vec{H}$ , comme celle représentée en figure 1.1 c, et qui est reprise en figure 1.3. Etant donné leur caractère irréversible, ces courbes sont aussi nommées courbes d'hystérésis.

### Courbe de première aimantation

Nous avons vu en section précédente que le matériau ferromagnétique pouvait être divisé en plusieurs domaines dont les directions d'aimantation sont variées ; l'aimantation macroscopique totale peut alors être nulle.

Cela peut se manifester pour un matériau ferromagnétique doux, ou parfois pour un matériau tel que déposé. L'application d'un champ vient modifier cette répartition en domaines et une valeur d'aimantation de plus en plus forte est obtenue sous l'application du champ, grâce, par exemple, à une propagation des parois des domaines (décrite dans les sections suivantes). L'aimantation en fonction du champ donne alors une courbe dite de première aimantation (cf ligne continue en fig. 1.3).

Nous allons maintenant rappeler les notions de propriétés magnétiques intrinsèques, qui dépendent uniquement de la composition et de la structure du matériau, de propriétés extrinsèques, qui sont elles reliées à des phénomènes microscopiques de la structure telles que la forme du système, ou la présence de joints de grains, ou défauts, au sein du matériau, et à la présence de parois de domaines mobiles.

Nous préciserons ensuite les propriétés principales du cobalt, qui sera le matériau ferromagnétique étudié au cours de ma thèse.

### 1.2.1 Propriétés intrinsèques

#### Aimantation spontanée $M_{spont}$ et aimantation à saturation $M_s$

Nous avons vu dans la section précédente que l'aimantation spontanée  $M_{spont}$  se définit comme l'aimantation s'exprimant au sein d'un matériau ferromagnétique sans champ extérieur appliqué. C'est un terme général qui peut alors être mentionné dans le cas d'une courbe de première aimantation ou bien à la rémanence après l'application d'un champ.

L'aimantation à saturation  $M_s$  représente la valeur maximale atteinte lorsque le champ magnétique appliqué est fort (cf fig. 1.3). Tous les moments magnétiques sont alors alignés dans la direction du champ appliqué et nous observons une saturation sur la courbe d'aimantation. D'un

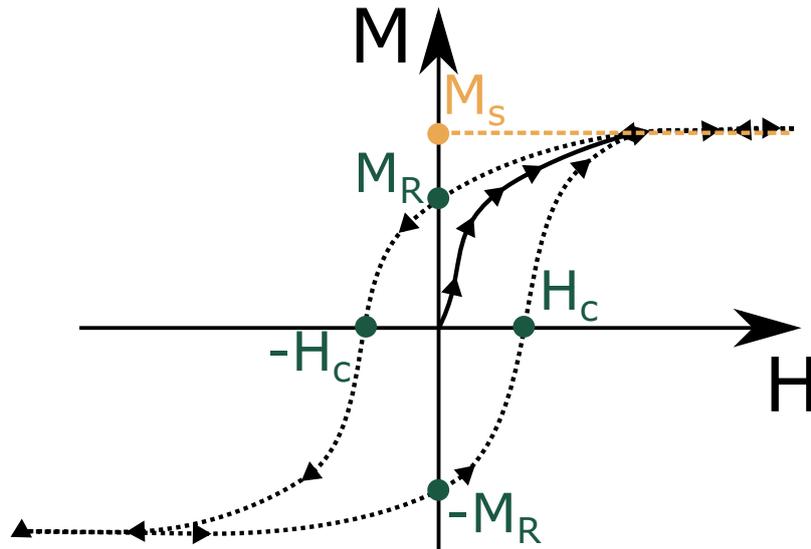


FIGURE 1.3: Courbe d'aimantation (cycle d'hystérésis) d'un matériau ferromagnétique (en pointillés). Allure de la courbe  $M(H)$  pour un matériau initialement désaimanté (ou courbe de première aimantation) en ligne continue. Différentes grandeurs caractérisent un système magnétique : l'aimantation à saturation  $M_s$ , le champ coercitif  $H_c$  et l'aimantation rémanente  $M_r$ .

point de vue expérimental,  $M_s$  est donc décrite comme la valeur d'aimantation obtenue sous l'application de forts champs magnétiques.

Nous verrons aux chapitres 4 et 5 que nous ferons la distinction entre l'aimantation à saturation  $M_s$  obtenue à fort champ magnétique ( $1T$ ), et l'aimantation à saturation à faible champ  $M_{s\text{ lf}}$  déduite des mesures en Kerr polaire à plus faibles champs magnétiques appliqués. Ces distinctions nous auront permis de définir une gamme de valeur pour la température de Curie  $T_c$  de notre échantillon (voir chapitre 5, section 5.2.4).

### Température de Curie $T_c$

Nous avons vu en section 1.1.1, qu'au dessus de la température d'ordre  $T_c$ , un matériau ferromagnétique transite vers l'état paramagnétique. La valeur de cette température est propre au matériau ainsi qu'à ses dimensions. Nous verrons aux chapitres 4 et 5, que cette valeur peut être fortement réduite dans le cas de films ultra-minces, par rapport à la valeur volumique.

### Champ d'anisotropie $H_a$

Nous verrons en section 1.3.4, qu'un terme d'énergie est lié à la direction de l'aimantation avec le système considéré.  $\vec{M}$  s'orientera dans des directions plus ou moins faciles par rapport au coût en énergie que cela représente. Le champ d'anisotropie  $H_a$  correspond au champ utile pour aligner l'aimantation dans une direction considérée comme difficile pour le système (fort coût en énergie d'anisotropie). Il ne peut être extrait directement de la courbe d'hystérésis d'un matériau. Une mesure du profil d'aimantation en fonction du champ  $H$ , appliqué selon une direction difficile est alors nécessaire. Son extraction sera détaillée au chapitre 3, ainsi qu'en annexe D, et une section complète est dédiée à la description de l'anisotropie dans les sections qui suivent.

## 1.2.2 Propriétés extrinsèques

### Rémanence $M_r$

Après une première application de champ, jusqu'à des valeurs fortes, lorsque l'amplitude de ce champ décroît jusqu'à 0, on remarque que la valeur de l'aimantation ne chute pas à 0 mais conserve une valeur non nulle, appelée aimantation rémanente  $M_r$  (cf fig. 1.3). Cette appellation signifie simplement "ce qui reste". Elle peut être extraite lorsque le champ est ramené à 0 en partant d'un état saturé à forts champs magnétiques positifs  $M_r$  ou négatifs  $-M_r$ .

L'appellation cycle d'hystérésis vient du fait que lorsque l'on fait varier le champ magnétique entre deux maximaux  $\pm H_0$  la courbe d'aimantation apparaît sous forme de cycle, sa variation n'est donc pas réversible. Le signe de  $M_r$  dépend du signe du champ appliqué antérieurement.

### Champ coercitif $H_c$

Le champ coercitif  $H_c$  est défini comme le champ permettant à l'annulation du signal d'aimantation selon une direction. Il se repère comme correspondant aux valeurs de  $H$  pour lesquelles le signal d'aimantation croise l'axe des abscisses (cf fig. 1.3). La valeur de ce champ permet à nouveau de distinguer les grandes classes de matériaux ferromagnétiques. En effet, un matériau doux aura une valeur de champ coercitif faible (typiquement  $< 1mT$ ), alors qu'elle sera très élevée pour un matériau dur ( $> 60mT$ ). Les matériaux doux se retrouveront dans les applications telles que la fabrication de capteurs, leur forte susceptibilité en faisant un atout pour obtenir une forte induction à partir d'un champ faible. Et nous retrouverons les matériaux durs pour la réalisation d'aimants permanents ou pour l'enregistrement magnétique.

## 1.2.3 Exemple du cobalt, matériau ferromagnétique à température ambiante

J'ai étudié au cours de ma thèse des films minces de cobalt  $Co$ . Le  $Co$  massif est ferromagnétique à température ambiante et possède une  $T_c$  élevée de  $1394K$ . Une forte aimantation à saturation a été reportée à  $300K$  égale à  $1370kA/m$  [3]. Le moment magnétique du  $Co$  correspond à  $1,6 - 1,7\mu_B$ /atome [4], et sa structure cristalline (hexagonal compact  $hcp$  ou cubique centré  $bcc$ ) est dépendante de la température de mesure et de la température de recuit utilisée après le dépôt du matériau. Dans notre cas, nous verrons aux chapitres 3 et 4 que nous n'avons pas réalisé de recuit sur nos couches et que nos dépôts ont été réalisés à  $300K$ , donc que la structure attendue à température ambiante est la structure hexagonale [4]. Notons tout de même que notre étude portera sur des couches ultra-minces de  $Co$  ( $< 2$  couches atomiques), donc qu'il est difficile de raisonner avec une structure particulière, car l'empilement de type hexagonal ( $ABC$ ) nécessite au moins trois couches atomiques.

Dans le cas de films très minces, la  $T_c$  est amenée à diminuer et à s'approcher de la température de mesure ( $300K$ ). En effet, la  $T_c$  est directement proportionnelle au nombre de plus proches voisins, qui est diminué dans le cas d'interfaces (couches minces). La valeur de l'aimantation spontanée peut donc être modifiée et sera très dépendante de la température de mesure. Nous illustrerons ceci au chapitre 4, ainsi qu'en annexe A pour des mesures réalisées à plus basses températures. Nos couches étant extrêmement fines, nous ne pourrions prendre la même hypothèse que dans les travaux précédents, réalisés à l'institut Néel par F. Ferraro au cours de sa thèse sur des couches de cobalt dont les épaisseurs variaient entre  $0,6$  et  $1,5nm$  [4]. Ses mesures

avaient été réalisées en considérant une aimantation à saturation constante en température. Nous verrons au chapitre 4 que cette hypothèse ne s'applique plus pour nos films de  $Co$ .

## 1.3 Énergies magnétiques

Nous allons maintenant définir les différents termes d'énergie magnétique entrant dans la description complète d'un système magnétique. La minimisation de l'énergie totale résultante permet de prévoir l'état stable (fondamental) du système. Nous décrirons dans les sections suivantes la formation de domaines magnétiques issus de la compétition de ces termes d'énergie et nous consacrerons une section entière à leurs dimensions en dernière section de ce chapitre.

La distinction principale à faire entre ces énergies est la distance sur laquelle elles agissent : très localement (courte portée) et concernent donc les sites atomiques les plus proches, ou bien à longue portée, elles influencent alors l'intégralité du système. Nous décrirons premièrement les différents termes d'interaction d'échange, puis nous parlerons de l'énergie Zeeman du système répondant à l'application d'un champ magnétique, nous décrirons l'interaction dipolaire au sein du système et finirons par décrire les différents termes rentrant dans l'expression de l'énergie d'anisotropie magnétique du système.

### 1.3.1 Énergie d'échange

#### 1.3.1.1 Échange symétrique isotrope (direct)

L'interaction d'échange est une interaction d'origine purement quantique et qui provient de la répulsion de Coulomb entre deux électrons situés sur des atomes voisins (ou sur le même atome), et qui devient dépendante de l'état de spin ("haut ou "bas") à cause du principe d'exclusion de Pauli. C'est une interaction à très courte portée qui est à l'origine de l'alignement des moments magnétiques permettant d'obtenir par exemple une phase ferromagnétique (décrite en section 1.1.1).

L'ordre de grandeur, le signe ainsi que la portée de l'interaction sont dépendants des atomes et de la structure cristallographique. A savoir que de manière phénoménologique, cette interaction peut toujours s'écrire sous la forme [3] :

$$e_{ex} = -1/2\mu_0 \sum_{ij} n_{ij} \vec{m}_i \vec{m}_j, \quad (1.7)$$

avec  $i \neq j$  et  $n_{ij}$  les coefficients d'interaction entre moments magnétiques.

Dans le cas des métaux de transition  $3d$ , nous nous trouvons dans un cas particulier où le moment orbital  $\mu_l$  est minimisé à cause du champ cristallin du solide. On parle alors d'extinction du moment orbital. L'interaction de type spin-orbite est alors très faible, voire inexistante. Le moment magnétique résultant correspond donc au seul moment de spin<sup>8</sup>. L'énergie d'échange s'écrit alors :

$$e_{ex \text{ spin}} = - \sum_{ij} J_{ij} \vec{S}_i \vec{S}_j, \quad (1.8)$$

---

8. En réalité, l'interaction spin-orbite est capable de restaurer un moment orbital faible  $\delta\mu_l$ , dont l'amplitude sera dépendante du moment de spin associé par rapport au réseau cristallin. C'est la restitution de ce léger moment orbital qui est à l'origine du phénomène d'anisotropie magnétique décrit dans le paragraphe précédent

avec  $J_{ij}$  les constantes d'échange entre deux atomes voisins<sup>9</sup>. Cette valeur est aussi appelée l'intégrale d'échange car elle est proportionnelle au recouvrement des orbitales, et s'annule si le recouvrement est inexistant<sup>10</sup>. Elle dépend donc de la distance entre les atomes et du type d'orbitales qui contribuent au magnétisme. Lorsque  $J > 0$ , un alignement parallèle des moments de spin est favorisé, menant à une configuration ferromagnétique.  $J < 0$  donne une configuration antiferromagnétique (lorsque les autres termes d'énergie sont négligés).

L'énergie d'échange d'un solide magnétique de volume  $V$  s'exprime sous forme continue :

$$E_{ex\ vol} = A_{ex} V M_s ((\vec{\nabla} m_x)^2 + (\vec{\nabla} m_y)^2 + (\vec{\nabla} m_z)^2), \quad (1.9)$$

avec  $m_{x,y,z}$  la composante réduite du moment magnétique dans les trois directions de l'espace et  $A_{ex}$  la constante d'échange du matériau considéré en  $J/m$  ( $A_{ex} \approx \frac{NJS^2}{2a}$  [5], avec  $N$  le nombre de plus proches voisins, et  $S$  le nombre quantique total de spin). Elle est fonction de l'intégrale d'échange  $J$ , mais aussi de la distance entre les moments, de la structure cristallographique du solide, et du nombre de plus proches voisins.

Ce type d'échange est qualifié d'échange isotrope (ou direct). Pour les cas où le recouvrement direct n'est plus possible du fait d'un éloignement des spins (alors plus proches du noyau atomique), une interaction d'échange indirecte peut faire perdurer un certain ordre magnétique. Nous résumerons rapidement la théorie de ce type d'échange car elle est en dehors du thème d'étude de cette thèse. Ces deux types d'interaction d'échange (direct et indirect) sont qualifiés d'interaction symétrique car l'énergie se définit comme le produit scalaire de deux spins voisins. Nous verrons par la suite qu'il est aussi possible de définir un échange de type anti-symétrique, dont l'énergie (discrète) dépendra du produit vectoriel de deux spins.

### 1.3.1.2 Échange symétrique indirect

Comme mentionné ci-dessus, ce type d'échange intervient lorsque le recouvrement des orbitales est impossible. L'ordre magnétique se réalise alors de proche en proche. L'échange symétrique indirect est à l'origine de types d'interactions telles le super-échange, mettant en relation les électrons de deux atomes magnétiques par l'intermédiaire d'une hybridation avec les orbitales de l'oxygène (dans le cas des composés magnétiques isolants), ou encore l'interaction de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (*RKKY*).

C'est ce terme *RKKY* qui peut expliquer l'interaction d'échange dans les matériaux magnétiques de type terres rares. Dans ces matériaux, les orbitales responsables du magnétisme sont les orbitales  $4f$  dont l'expansion spatiale est très réduite et donc aucun recouvrement direct avec les atomes voisins n'est permis. L'interaction d'échange se fait donc par l'intermédiaire des électrons de conduction situés sur des bandes plus étendues spatialement ( $s$ ,  $p$  et  $d$ ) qui peuvent donc se déplacer d'un atome à l'autre. Ces électrons se polarisent au contact du champ induit par les électrons des orbitales  $4f$  et il s'ensuit alors une interaction d'échange indirecte avec les électrons  $4f$  des sites voisins. Il a été observé que le signe de cette interaction varie avec la distance entre les différents sites, entraînant ainsi un caractère oscillant du ferromagnétisme. Cette interaction d'échange indirecte a ensuite été généralisée au système de type multicouches mettant en relation les électrons de deux matériaux magnétiques par l'intermédiaire des électrons de conduction d'un métal non-magnétique.

9. A noter que l'interaction d'échange  $J$  décrit une interaction entre spins, mais il est possible de revenir à l'interaction  $n$  entre moments magnétiques. En effet  $J = 8\mu_0\mu_B^2 n$  [3]

10. Rappelons que seules les fonctions d'onde (orbitales) des niveaux partiellement remplis viennent contribuer au magnétisme.

### 1.3.1.3 Échange anti-symétrique : Interaction de Dzyaloshinskii-Moriya

Lorsque le matériau magnétique est en contact avec un métal à fort couplage spin-orbite (*SOC*), ne présentant alors pas de symétrie d'inversion (interface), l'échange inter-atomique décrit ci-dessus (section 1.3.1.1) peut également posséder une composante anti-symétrique : l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (*DMI*). Elle fut introduite par Dzyaloshinskii en 1958 [6], qui avançait la thèse qu'il y avait un lien direct entre la configuration magnétique d'un système et sa structure cristallographique. Pour cela, il s'était intéressé à l'étude de certains composés, comme l'hématite  $\alpha - Fe_2O_3$ , pour lesquels, malgré leur configuration anti-ferromagnétique ( $J < 0$ ), un faible moment magnétique permanent était mesuré à basses températures. Cette faible composante d'aimantation a été attribué à une brisure de symétrie au sein de ce solide. Moriya montra par la suite (1960) comment calculer ce type d'interaction supplémentaire [7]. Il a pour cela considéré l'expression d'une interaction de type super-échange en y ajoutant une interaction de spin-orbite s'exprimant dans cette structure cristalline. Dzyaloshinskii et Moriya avaient qualifié cette interaction de super-échange anisotrope avant qu'elle ne prenne leurs noms ; elle s'écrit :

$$e_{DMI} = - \sum_{ij} \vec{D}_{ij} \cdot (\vec{S}_i \times \vec{S}_j), \quad (1.10)$$

avec  $\vec{D}_{ij}$  étant le vecteur *DMI*.

Cette énergie est donc minimisée pour des spins orthogonaux entre eux, cette interaction favorise donc des alignements non colinéaires des moments magnétiques. Cette interaction peut s'exprimer dans des matériaux massifs dont la structure cristalline ne possède pas de symétrie d'inversion. Dans ce cas, l'effet se remarque dans chacune des mailles du réseau.

Mais elle peut aussi s'exprimer dans le cas d'interfaces entre films qui brisent la symétrie. Dans ce cas, nous pouvons d'ordinaire exprimer le vecteur *DMI* comme :  $\vec{D}_{ij} = D_{ij}(\vec{n} \times \vec{r}_{ij})$ , avec  $\vec{r}_{ij}$  le vecteur unitaire entre les deux sites  $i$  et  $j$  (dépendant tout de même de la structure cristalline) et  $\vec{n}$  est le vecteur normal à la surface magnétique. Ce vecteur *DMI* est donc fonction des sites considérés.

Nous représentons schématiquement en figure 1.4 la trajectoire d'un électron "sautant" d'un site à un autre (comme décrit en section 1.1.3) dans le cas d'une interface. Cette interface entre un métal ferromagnétique, dont les électrons sont itinérants, et un métal lourd, qui apporte un couplage spin-orbite fort illustre cette inclinaison induite dans l'orientation des moments magnétiques (non-colinéarité induite) issus de l'interaction avec le champ effectif  $\mu_0 \vec{H}_{eff} = \vec{B}_{eff}$  déduit de l'interaction spin-orbite et dépendant du site considéré.

Lorsque le *DMI* domine les autres contributions, cette interaction impose un sens de rotation des moments de spins qui est fixe selon l'interface considérée. Cela mène à des ordres magnétiques chiraux au sein des structures comme par exemple l'état de domaines périodiques en bandes (stripes), pour lesquels l'aimantation possède partout le même sens de rotation, ou encore l'état skyrmionique. Nous reviendrons sur ces objets magnétiques particuliers au chapitre 2 et au chapitre 5.

Dans le cas de films minces avec un axe facile d'aimantation perpendiculaire à la couche (selon la direction  $z$  dans notre cas représenté en figure 1.4), l'énergie d'interaction *DMI* d'interface (ou *IDMI*) peut alors se mettre sous la forme :

$$E_{DMI \text{ tot}} = VD \left[ \vec{x} \left( \vec{m} \times \frac{\partial \vec{m}}{\partial y} \right) - \vec{y} \left( \vec{m} \times \frac{\partial \vec{m}}{\partial x} \right) \right], \quad (1.11)$$

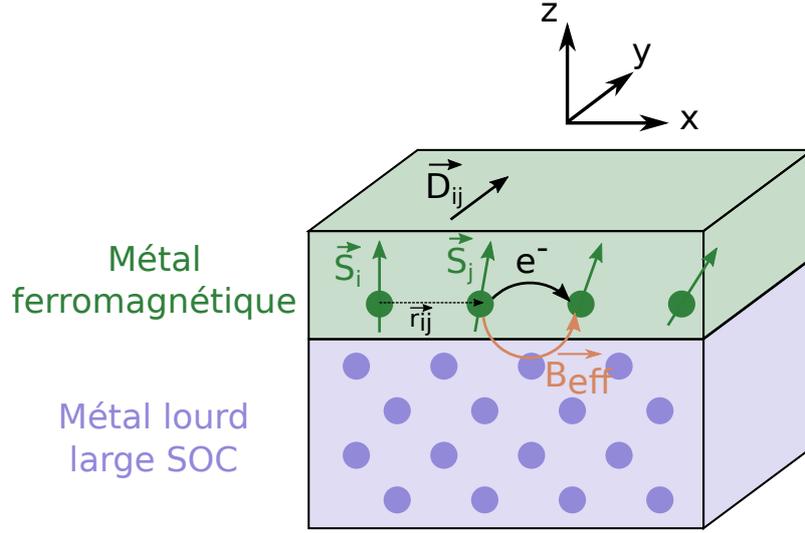


FIGURE 1.4: Électron sautant d'un site à un autre. Représentation schématique de l'effet d'inclinaison due à l'interaction  $DMI$  d'interface. Le modèle utilisé pour l'interaction  $DMI$  de type surfacique correspond à un échange entre trois sites : deux spins atomiques et un voisin non magnétique à fort couplage spin-orbite [8].

avec  $D$  le facteur  $DMI$  de volume, directement lié à la norme  $D_{ij}$  du vecteur en écriture atomique, et  $\vec{m}$  les moments magnétiques. Notons que  $D$  est un terme de volume mais qu'il s'exprime en  $J/m^2$ . En effet, comme le prouvent les calculs de Yang et al. [9] sur une interface de  $Co/Pt$ , le terme  $DMI$  d'interface prend tout son sens car ils ont montré que les atomes se situant directement à l'interface sont les plus influents pour la déduction d'un facteur  $DMI$ . Nous décrirons au chapitre 5 nos mesures de facteur  $DMI$  en ( $J/m^2$ ) pour nos échantillons.

#### 1.3.1.4 Bilan du tenseur d'interactions d'échange

En conclusion, les interactions d'échange sont nombreuses et ne promeuvent pas le même type d'alignement pour les moments magnétiques. La compétition entre l'échange direct isotrope et l'échange anti-symétrique amène à des structures magnétiques particulières, comme par exemple les domaines périodiques avec un sens de rotation fixée pour l'aimantation : la spirale de spin (cycloïde). En comparant la force de chacun :  $\approx \frac{A_{ex}}{D}$ , nous pouvons déduire une grandeur homogène à une longueur et proportionnelle à la période de la cycloïde.

Finalement, les interactions d'échange peuvent être regroupées au sein d'un tenseur qui regrouperait tous ces types d'interactions [10], et nous pourrions écrire l'énergie d'échange (en écriture atomique) comme :

$$E_{ex\ tot} = \sum_{ij} \vec{S}_i \bar{T}_{ij} \vec{S}_j, \quad (1.12)$$

avec  $\bar{T}$  le tenseur des interactions d'échange pouvant s'écrire :  $\bar{T}_{ij} = J_{ij} \vec{I}d + \bar{T}_{ij}^{anti-sym} + \bar{T}_{ij}^{sym\ ind}$ , avec  $\vec{I}d$  la matrice identité. Le premier terme étant lié à l'échange direct, le second au terme  $DMI$  et le dernier aux types d'échanges indirect ( $RKKY$ ...).

### 1.3.2 Energie Zeeman

Lorsqu'un corps magnétique de moment  $\vec{m}$  est soumis à un champ magnétique extérieur  $\vec{H}$ , un couple s'exerce par  $\vec{H}$  sur le vecteur  $\vec{m}$ , correspondant à une densité d'énergie :

$$e_Z = -\mu_0 \vec{m} \cdot \vec{H} \quad (1.13)$$

D'un point de vue microscopique, le champ magnétique  $\vec{H}$  agit sur les moments  $\mu_l$  et  $\mu_S$  définis en section 1.1 et vient abaisser l'énergie des configurations pour lesquelles ces moments sont orientés dans le même sens que le champ appliqué. De plus, l'énergie des configurations de moments opposés au champ magnétique appliqué est augmentée. Pour un échantillon volumique d'aimantation  $\vec{M}$  ; cette énergie s'écrit alors :  $E_Z = -V\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}$ , avec  $V$  le volume du corps magnétique.

Ce type d'action est ni à courte portée, ni à longue portée, et est directement dépendant de la valeur locale du champ appliqué.

### 1.3.3 Energie dipolaire

L'énergie dipolaire  $E_d$ , ou énergie de forme (ou encore énergie magnétostatique ou démagnétisante), décrit l'interaction entre la distribution d'aimantation dans le corps magnétique, avec le champ induit par cette aimantation. Ce champ s'oppose localement à l'aimantation et est communément appelé champ démagnétisant,  $\vec{H}_d$ . Cette interaction peut donc être écrite comme une énergie de type Zeeman, entre  $\vec{H}_d$  et l'aimantation  $\vec{M}$  du système :

$$E_d = -(1/2)\mu_0 V \vec{M} \cdot \vec{H}_d, \quad (1.14)$$

le facteur  $1/2$  est là car ce type d'énergie est une self énergie (aucun agent extérieur n'est impliqué).

C'est une interaction à très longue portée car elle trouve son origine dans chacun des moments magnétiques du système : pour chaque site atomique, le moment magnétique ressentira le champ démagnétisant induit par tous les autres moments du système.

Cette interaction est très dépendante de l'orientation de l'aimantation par rapport à la forme du système, et est équivalente à une anisotropie dans le cas de dimensions particulières. On parle alors d'anisotropie de forme. Dans le cas de films minces par exemple, l'épaisseur du matériau est souvent inférieure à ses dimensions latérales et le champ démagnétisant induit des "charges magnétiques" sur les interfaces. Pour éloigner ces charges magnétiques et donc diminuer le champ démagnétisant, cette anisotropie de forme aura tendance à favoriser un alignement de l'aimantation parallèlement à la surface du film (cf fig. 1.5).

Le champ démagnétisant peut s'exprimer au moyen de coefficients démagnétisants. Ainsi :  $\vec{H}_d = -\vec{N}\vec{M}$ . Un échantillon uniformément aimanté de forme ellipsoïdale aura une densité volumique d'énergie dipolaire de la forme :  $e_d = 1/2\mu_0 M_s^2 (N_x m_x^2 + N_y m_y^2 + N_z m_z^2)$ , avec  $N_x + N_y + N_z = 1$ . Pour rappel,  $m_x$ ,  $m_y$  et  $m_z$  les composantes de l'aimantation normalisée. Et dans le cas d'une couche mince dont la normale à la surface est orientée selon l'axe  $z$ , on a  $N_x = N_y = 0$  (direction considérée comme infinie, le champ démagnétisant est donc nul si  $\vec{M}$  est orienté dans ces directions) et  $N_z = 1$ . Dans ce cas, la densité d'énergie  $e_d$  se simplifie en :  $e_d = 1/2\mu_0 M_s^2 = K_d$  où  $K_d$  est la constante dipolaire ou constante d'anisotropie de forme <sup>11</sup>.

11. Dans notre cas, nous définirons  $K_d > 0$ , et comparerons donc sa valeur avec celle de l'anisotropie de forme pour définir l'axe de facile aimantation (cf section 1.4.1). Notons que cette constante peut aussi être définie comme négative dans certaines références.

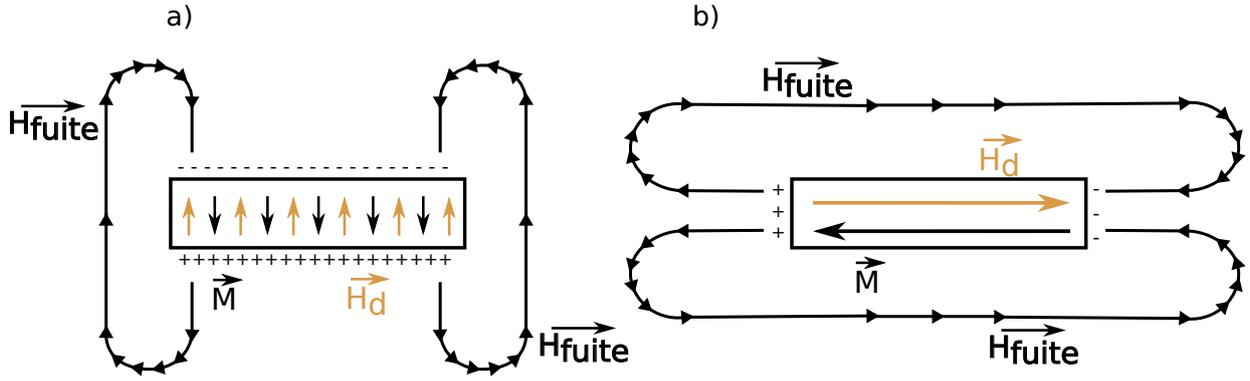


FIGURE 1.5: Représentation schématique du champ démagnétisant  $\vec{H}_d$ , du champ de fuite et des charges magnétiques induites par un matériau aimanté de manière homogène :

- a) Perpendiculairement au plan du film,
- b) Parallèlement au plan du film.

Nous avons représenté en figure 1.5 a) et b) les charges magnétiques induites aux surfaces d'un film mince dans le cas d'une aimantation favorisée perpendiculairement (a) et parallèlement (b) au plan de la couche. Notons que le champ induit se nomme champ démagnétisant à l'intérieur du corps magnétique (et s'oppose à la direction de  $\vec{M}$ ) et qu'il est appelé champ de fuite à l'extérieur (et ferme alors les lignes de champ de  $\vec{M}$ ).

### 1.3.4 Energie d'anisotropie magnétocristalline

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline trouve son origine dans une interaction de type spin-orbite entre les électrons d'un atome et la modification des fonctions d'ondes (orbitales) au sein d'un réseau cristallin<sup>12</sup>. Elle décrit le fait que l'énergie magnétique d'un système dépend de l'orientation du moment magnétique  $\vec{m}$  par rapport à l'orientation cristalline du matériau étudié. En effet, l'interaction de type spin-orbite, couplant le moment de spin de l'électron avec son moment orbital, qui lui-même est lié au réseau cristallin du solide (par la présence du champ cristallin) génère un terme d'anisotropie magnétocristalline. Dans ce cas, les moments de spins ne sont pas libres de s'orienter dans toutes les directions de l'espace, mais bien seulement selon celles qui minimiseront cette interaction (spin-orbite). C'est une interaction à très courte portée qui dépend de l'environnement proche de chaque site atomique. Elle aura donc tendance à favoriser certaines directions pour l'aimantation (correspondant à certains axes du cristal). Dans le cas le plus simple, le cristal considéré possède un seul axe de symétrie, et l'on parle alors d'anisotropie uniaxiale que l'on peut écrire :

$$E_{anis} = K_V V \sin^2 \theta, \quad (1.15)$$

avec  $K_V$  la constante d'anisotropie magnétocristalline (que nous décrirons plus en détail en section 1.4), et  $\theta$  l'angle entre l'aimantation  $\vec{M}$  et l'axe d'anisotropie considéré.

Nous allons maintenant décrire comment l'anisotropie magnétique peut être écrite dans le cas de films ultra-minces pour lesquels un terme d'anisotropie de surface gagne en importance, et nous préciserons le type de multi-couches étudiées lors de ma thèse.

<sup>12</sup>. Ce phénomène est communément appelé champ cristallin. Il traduit le fait que  $\mu_i$  dépendra fortement de la nature du réseau cristallin étudié

## 1.4 Multicouches ultrafines de $Pt/Co/Al_2O_3$ et mesure de l'anisotropie magnétique perpendiculaire

Nous avons vu en section 1.3.1.3 que la brisure de symétrie d'un système (donc la présence de deux interfaces non équivalentes) pouvait jouer fortement sur l'énergie d'échange (avec l'expression d'un terme d'échange supplémentaire, anti-symétrique). Nous verrons que la présence d'interfaces peut aussi énormément influencer l'anisotropie magnétique d'un système. Nous décrirons les termes utilisées pour définir entièrement cette anisotropie (volume + interfaces), et nous détaillerons comment ces différents termes évoluent lorsque les dimensions du matériau sont réduites (films ultraminces).

### 1.4.1 Contexte : Expression de $K_{eff}$ dans le cas des films ultra-minces

Nous avons vu en section 1.3.4 que l'on parle d'anisotropie magnétique dès lors que l'énergie dépend de la direction de l'aimantation par rapport à l'échantillon. Dans le cas de films très minces, les atomes de surface vont avoir une contribution qui n'est plus négligeable par rapport aux atomes de volume, ce qui viendra modifier les propriétés de l'objet. Les couches minces sont donc généralement soumises à d'importants phénomènes d'anisotropie. Nous verrons que la force de l'anisotropie, mais aussi parfois la direction des axes d'anisotropie peuvent donc être modifiées en jouant sur l'épaisseur du film.

Deux sources d'anisotropie ont déjà été mentionnées : l'anisotropie de forme ( $K_d$ , due à l'interaction dipolaire, cf section 1.3.3) et l'anisotropie magnétocristalline ( $K_V$ , cf section 1.3.4). L'anisotropie de forme est un terme d'anisotropie volumique, pouvant s'écrire dans le cas de couches minces :  $e_d = -K_d \sin^2(\theta)$ , avec, pour rappel,  $\theta$  l'angle entre  $\vec{M}$  et l'axe d'anisotropie considéré (ici perpendiculaire à la surface de la couche). Afin de décrire entièrement l'anisotropie d'un système, un terme d'anisotropie magnéto-élastique peut s'ajouter, mais nous ne le considérerons pas dans notre étude.

L'existence d'un terme d'anisotropie d'interface avait été prédit par Louis Néel dès 1953 [11] et cela a été confirmé expérimentalement dans les films minces [12] ainsi que dans des multicouches (Co/Pt et Co/Pd [13]) par la suite. Cette interaction étant très locale, le coefficient d'anisotropie par atome ne dépend que de ses premiers voisins. Il y aura donc deux types d'atomes à dissocier : les atomes de volume et les atomes des interfaces, dont les coefficients seront différents.

Dans le cas de films minces uniformes dans le plan, ces trois sources d'anisotropie (forme, magnétocristalline et interface) peuvent donc être regroupées en une énergie d'anisotropie magnétique s'écrivant comme :

$$E_{MAE} = K_{eff} V \sin^2(\theta), \quad (1.16)$$

avec  $K_{eff}$  la constante d'anisotropie effective, qui regroupe les différentes constantes mentionnées plus haut.  $\theta$  a été défini plus haut, ainsi qu'en section 1.3.4. Pour  $K_{eff}$  positive, cette énergie est minimisée lorsque l'aimantation se trouve alignée avec l'axe d'anisotropie. Cet axe est alors qualifié d'axe facile (axe difficile dans le cas contraire).

En séparant donc ces termes en termes d'anisotropie de volume  $K_v$  et d'anisotropie de surface  $K_s$ , la constante d'anisotropie effective peut alors s'écrire :

$$K_{eff} = K_v + \frac{K_s}{t}, \quad (1.17)$$

avec  $t$  l'épaisseur du film magnétique mince considéré,  $K_s$  la constante d'anisotropie de surface dans laquelle nous regroupons les constantes de la première et de la seconde surface ( $K_s Pt/Co$  et  $K_s Co/Al_2O_3$  dans le cas de notre système).  $K_v$  représente les termes d'anisotropie de volume et regroupe l'anisotropie magnétocristalline de volume  $K_V$  ainsi que l'anisotropie de forme  $-K_d$ . Malgré le fait que les couches déposées en réalité ne présentent pas des interfaces de qualité parfaite (présence de rugosité et de mixité des matériaux), la relation phénoménologique (1.17) décrit généralement bien leurs propriétés. Un écart à cette relation est observé pour des épaisseurs très faibles (voir fig. 1.6) quand le mélange aux interfaces devient non négligeable. La rupture de pente du profil  $K_{eff} \cdot t$  à très faibles épaisseurs ( $\leq 5\text{\AA}$  en figure 1.6) a déjà été observée dans le cas d'une anisotropie de surface magnétoélastique montrant la transition entre un régime cohérent et un régime incohérent où l'introduction de nombreuses dislocations d'interface vient dominer. Dans notre cas, nous verrons aux chapitres 4 et 5 que nos valeurs de  $K_{eff}$  se situent dans cette zone spéciale et que cela sera très fortement lié à la modification de notre interface (de plus en plus oxydée, donc présentant une perte de l'épaisseur de cobalt).

Nous avons représenté en figure 1.6 les valeurs de  $K_{eff} \cdot t$  en fonction de l'épaisseur du film ferromagnétique  $t$ . Ces mesures avaient été réalisées sur des multi-couches de  $Pt/Co$  [14]. On observe bien une relation linéaire comme décrite par l'équation (1.17) et une déviation pour de très faibles épaisseurs ( $t < 7\text{\AA}$ ). En utilisant l'expression (1.17), nous déduisons que la pente de la droite obtenue correspond à  $K_v$  et que l'ordonnée à l'origine n'est autre que  $K_s$  (cf fig. 1.6).

Un résultat intéressant peut être déduit de ce type de tracé. En effet nous remarquons qu'il existe une valeur d'épaisseur critique  $t_c$  (proche de  $1,2\text{nm}$  dans cet exemple) pour laquelle la valeur de  $K_{eff} \cdot t_{Co}$  change de signe. Cette épaisseur critique représente une transition, appelée réorientation de l'aimantation, entre un système d'axe facile perpendiculaire et planaire. Pour rappel, lorsque  $K_{eff} > 0$ , l'axe facile sera l'axe perpendiculaire au plan de la couche.

Le terme dominant dans l'expression de  $K_v$  est  $K_d$ . En effet, en prenant les valeurs usuelles pour le  $Co$  massif hexagonal, on compare :  $|K_V| = 0,45 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3 < |K_d| = 1,25 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3$ . Nous avons vu que, dans le cas de films minces, l'interaction dipolaire aura tendance à préférer une orientation de l'aimantation parallèle au plan de la couche (afin de minimiser les charges magnétiques induites en surface, cf section 1.3.2). C'est ce qui est observé en l'absence d'anisotropie d'interface.

Cependant, pour une valeur positive et suffisamment importante de  $K_s$ , cette anisotropie de surface peut venir compenser celle de forme et donc une réorientation est alors possible pour des valeurs d'épaisseurs de films inférieures à  $t_c$  et lorsque  $K_{eff} > 0$ . On parle alors d'anisotropie perpendiculaire magnétique (*PMA*). La première mise en évidence de cette réorientation date de 1968, pour une monocouche de  $NiFe$  sur du  $Cu$  [12].

Nous verrons au chapitre 4 que la grandeur généralement mesurée n'est pas directement la valeur de  $K_{eff}$ , mais que nos techniques de mesures (décrites au chapitre 3), nous permettent d'extraire la valeur du champ utile pour amorcer cette réorientation. Ce champ est appelé champ d'anisotropie  $H_a$  et a été introduit en section 1.2.1 (et sera à nouveau décrit en section 1.5.2). Sa valeur est directement liée à la valeur de  $K_{eff}$  et s'écrit :  $\mu_0 H_a / 2 = K_{eff} / M_s$ , avec  $M_s$  l'aimantation à saturation atteinte lors de l'application d'un champ  $H \geq H_a$ .

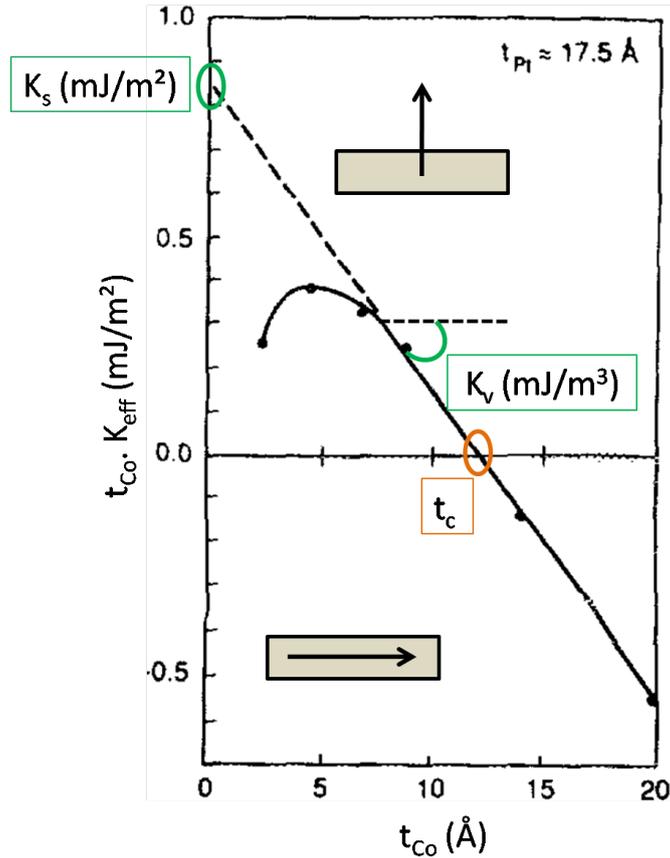


FIGURE 1.6:  $K_{eff} \cdot t_{Co}$  ( $\text{J}/\text{m}^2$ ) en fonction de  $t_{Co}$  ( $\text{\AA}$ ) pour une structure en multicouche de  $Co/Pt$  (1 seule bicouche pour la plus faible épaisseur de  $Co$ ). Mise en évidence de la réorientation de l'aimantation pour  $t = t_c$  et de l'extraction graphique des valeurs de  $K_s$  et de  $K_v$ . Figure adaptée de [14].

### 1.4.2 Origine de l'anisotropie perpendiculaire magnétique dans les systèmes $Pt/Co/Al_2O_3$

Nous allons maintenant discuter l'origine microscopique de ce phénomène particulier de *PMA*. Pour comprendre entièrement l'existence d'une anisotropie d'interface, des calculs de structure de bandes sont nécessaires, incluant une interaction spin-orbite. Ce que nous pouvons résumer de ces calculs est que ce terme d'anisotropie est très sensible à la structure de bandes électroniques au voisinage du niveau de Fermi. Ceci implique que  $K_s$  est fonction du remplissage des bandes  $3d$  des métaux de transition<sup>13</sup>. Nous avons vu en section 1.1.3 que le décalage selon l'état de spin de ces bandes  $3d$  est le phénomène engendrant le ferromagnétisme dans un matériau. Ce décalage des bandes est directement dû à l'existence du champ cristallin, qui lui-même peut être influencé par une brisure de symétrie (effet d'interface) ou encore par une hybridation des orbitales atomiques aux interfaces de la couche magnétique. En identifiant quelles orbitales contribuent le plus à l'anisotropie magnétocristalline, ces calculs permettent de faire une corrélation entre le remplissage des sous-bandes (d'états de spins respectifs "haut" et "bas") et une tendance à l'anisotropie planaire ou perpendiculaire.

Notons que l'anisotropie est renforcée aux interfaces des couches ultra-minces car l'extinction du moment orbital, assez fort dans les métaux  $3d$ , que nous avons mentionné en section

13. Lui-même dépendant de l'état de spin (haut ou bas)

1.3.1.1, se trouve extrêmement réduit aux interfaces, le moment orbital n'étant plus influencé par le réseau cristallin. Il y a donc une anisotropie de  $\mu_l$  aux interfaces, ce qui entraînera une anisotropie de  $\mu_s$ , de par la forte interaction de type spin-orbite. L'hybridation des différentes orbitales ne vient que renforcer cette anisotropie de  $\mu_l$  et le remplissage de bandes en est alors influencé.

Le type de système étudié au cours de ma thèse est une tri-couche de  $Pt/Co/Al_2O_3$ . Il a été démontré que ces systèmes composés d'un métal lourd ( $HM$ ), d'un métal ferromagnétique ultrafin ( $t < 1nm$ )  $FM$  et d'un oxyde sont le siège d'une forte  $PMA$ . L'origine de l'expression d'un axe facile perpendiculaire à la structure ( $OOP$ ) est dû aux deux interfaces :  $Co/Pt$  ainsi que  $Co/Al_2O_3$ .

#### 1.4.2.1 Interface $Pt/Co$

L'origine de la  $PMA$  a d'abord été démontrée pour les interfaces de type  $HM/FM$ , où il est alors possible de jouer sur le remplissage des bandes de valence du  $FM$  grâce à l'hybridation entre ses orbitales  $3d$  et les orbitales d'un métal lourd sous-jacent. De fortes valeurs de  $PMA$  ont été trouvées pour des systèmes tels que  $Co/Pt$ ,  $Co/Pd$  ou encore  $Co/Au$ .

Plus particulièrement dans le cas de l'interface  $Co/Pt$  qui nous concerne, la forte  $PMA$  est due à l'hybridation entre les orbitales  $3d$  du  $Co$  et  $5d$  du  $Pt$ . Le contrôle du remplissage de bandes n'est que l'un des aspects engendré par l'interface avec un métal lourd. Le  $Pt$  est aussi source d'une forte interaction de spin-orbite, couplant ainsi les moments orbitaux et les moments de spins à l'interface.

L'effet de cette hybridation, alliée à une forte interaction spin-orbite à cette interface a donc des effets particuliers sur chacun des composés :

- Dans le cas du  $Co$ , les orbitales favorisant une orientation de moment magnétique  $OOP$  seront favorisées,
- Dans le cas du  $Pt$ , cette hybridation aura pour effet une légère induction de moments magnétiques à la surface du  $Pt$ , qui s'aligneront avec ceux du  $Co$  (comme mentionné en 1.1.2), venant donc renforcer cette anisotropie perpendiculaire [4].

Pour ce type de bicouches, des épaisseurs critiques de réorientation perpendiculaire ont été mesurées proches ou inférieures à  $2nm$  [12, 15].

#### 1.4.2.2 Interface $Co/AlO_x$

Plus récemment, il a été démontré qu'une anisotropie perpendiculaire pouvait être induite aux interfaces de type  $FM/MO_x$  [16, 17]. Les oxydes de métaux qui ont montré des résultats fructueux sont  $AlO_x$ ,  $MgO$  et  $TaO_x$ . Des valeurs d'épaisseurs critiques pour la réorientation ( $t_c$ ) ont alors été mesurées proches de  $3 - 4nm$  [1].

Deux phénomènes d'hybridation sont alors avancés comme étant responsables de l'expression d'une forte  $PMA$  pour ce type d'interface :

- Le fort recouvrement des orbitales électroniques de type  $2p_z$  de l'oxygène et de type  $3d_{z^2}$  du métal ferromagnétique induit une hybridation de ces orbitales
- De plus, une hybridation entre les différentes orbitales favorisant un moment d'orientation  $OOP$  ( $d_{xz, yz}$  et  $d_{z^2}$ ) au sein du métal de transition est aussi observée.

De ce fait, malgré la très faible interaction de type spin-orbite apportée par l'oxyde, cela est suffisant pour conférer aux états hybridés (orbitales  $OOP$ ) une plus basse énergie. Ce décalage en énergie entre les orbitales  $IP$  et  $OOP$  joue donc sur la position des bandes au voisinage du

niveau de Fermi, et donc sur le remplissage de ces bandes. Une anisotropie perpendiculaire est donc induite. Nous avons représenté en figure 1.7 les différentes orbitales électroniques  $2p$  et  $3d$  pour illustrer nos propos.

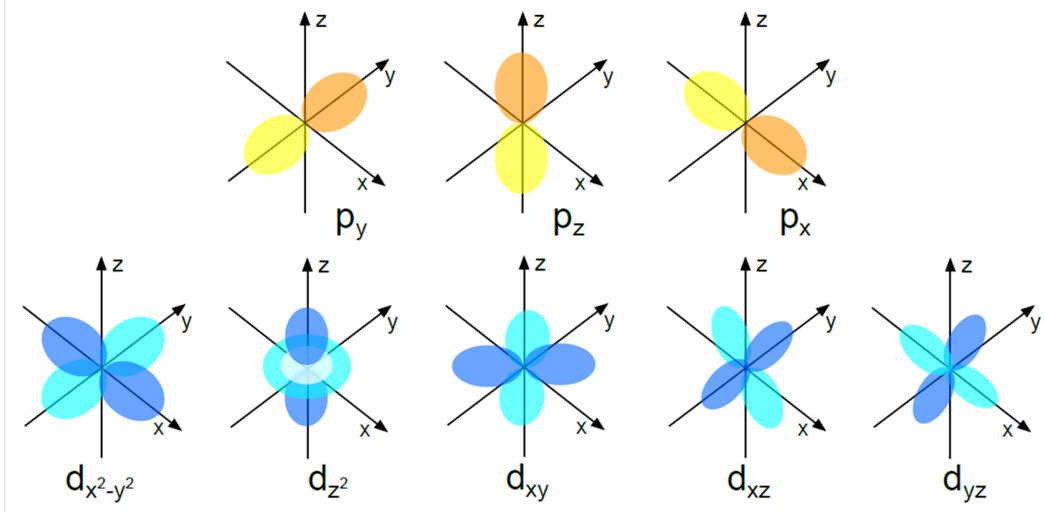


FIGURE 1.7: Représentation schématisque des orbitales atomiques de type  $2p$  de l'oxygène et  $3d$  du métal de transition. Figure reportée de [5].

L'interface qui nous concerne  $Co/AlO_x$  a été étudiée par Manchon et al. [18], qui ont montré que la  $PMA$  induite à ce type d'interface était très sensible aux conditions d'oxydation. Des calculs ab-initio ont bien confirmé que cet effet était réduit dans le cas d'une interface de type  $Fe/MgO$  sous ou sur-oxydée [19].

Manchon et al. ont donc contrôlé l'oxydation de leur interface en jouant sur les temps d'oxydation opérés par plasma d'oxygène, pour plusieurs échantillons différents de type  $Pt/Co/AlO_x$ . Ils ont noté que pour des temps d'oxydation assez courts ( $< 30s$ ), le film de  $Co$  préférait une aimantation dans le plan de la couche (cf fig. 1.8). Et pour des temps d'oxydation assez longs ( $> 45s$ ), la pénétration des atomes d'oxygène dans la couche de  $Co$  induisait une structure de type multi-domaines à aimantation perpendiculaire. Alors que pour des temps d'oxydation intermédiaire, une forte  $PMA$  était observée, avec des cycles présentant une forte valeur de  $H_c$ . Il y a donc un degré d'oxydation optimal, pour lequel la quantité de liaisons  $Co - O$  est optimale pour induire une forte  $PMA$ . Cette anisotropie est donc très sensible au degré d'oxydation de l'interface.

En conclusion, nous avons vu que l'anisotropie perpendiculaire au plan des films ( $PMA$ ) est induite par une contribution de surface due au contact d'un matériau ferromagnétique avec un métal lourd ( $Pt, Ta$ ). L'hybridation entre les orbitales du ferromagnétique et du métal lourd modifie la densité électronique et la structure de bandes des atomes ferromagnétiques à l'interface, et favorise un terme surfacique d'anisotropie hors plan. Il a aussi été démontré que des interfaces de types métal/oxyde, viennent favoriser ce terme d'anisotropie hors plan, par exemple dans les structures de type  $CoFeB/MgO$  très utilisées pour les applications de type mémoire ( $MRAM$ , qui seront décrites au chapitre 2) ou encore de type  $Co/AlO_x$ .

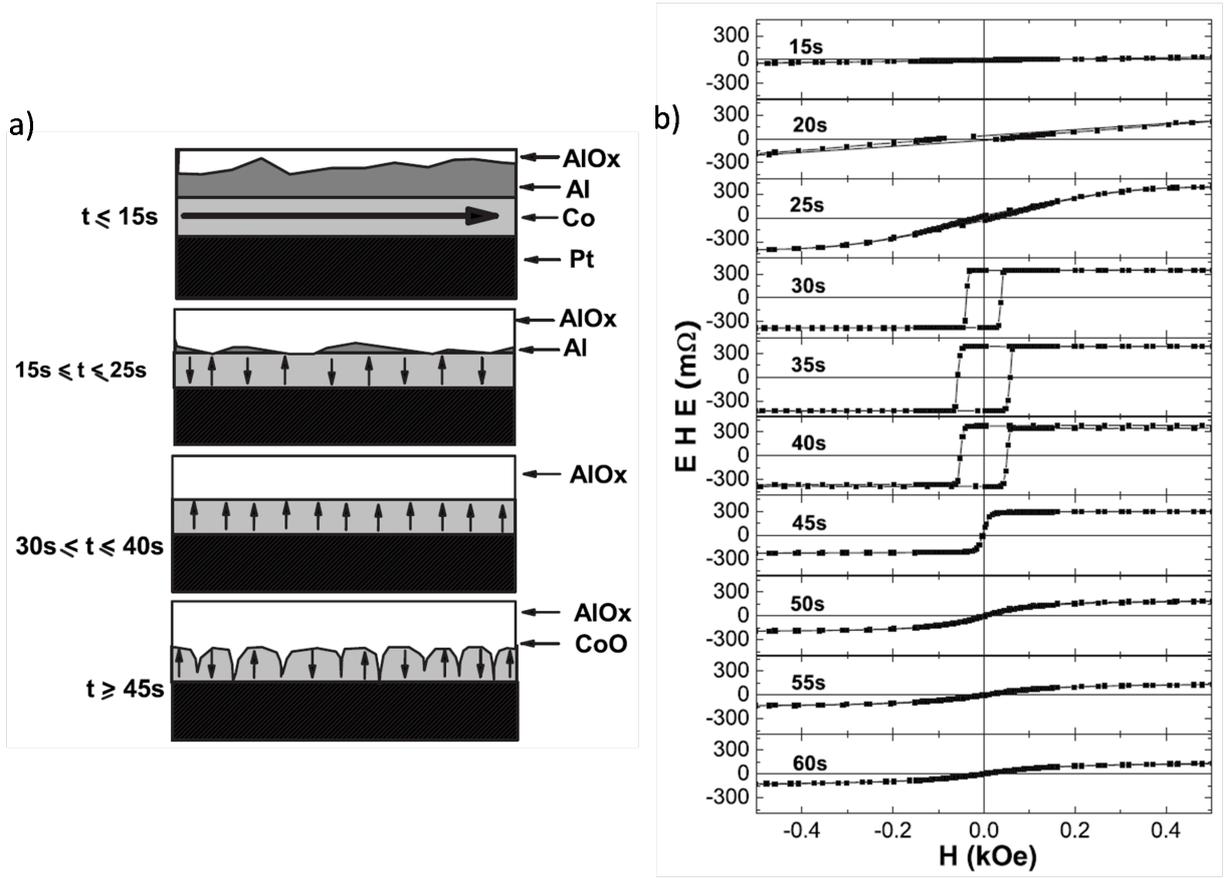


FIGURE 1.8: Représentation schématique de l'état d'oxydation de l'interface  $Co/AlO_x$ , avec précision sur la direction d'aimantation envisagée. Cycles d'effet Hall extraordinaire ( $EHE$ ) associés (cette méthode de mesure sera décrite au chapitre 3) [18]

### 1.4.3 Détermination expérimentale de l'anisotropie effective $K_{eff}$

#### 1.4.3.1 Méthode du triangle

En reprenant l'énergie d'anisotropie magnétique  $E_{MAE}$  (1.16) mentionnée plus haut, nous pouvons nous représenter la valeur absolue de  $K_{eff}$  comme la barrière d'énergie à franchir pour passer d'une configuration planaire à perpendiculaire.

Nous pouvons retrouver cette valeur d'énergie en raisonnant avec le travail à apporter pour aimanter le film ultra-fin dans l'une ou l'autre de ces orientations. Le travail utile pour passer d'une valeur d'aimantation  $M$  à une valeur légèrement supérieure  $M + \delta M$ , sous l'application d'un champ magnétique de valeur  $\mu_0 H$  est alors égal à :  $\delta W = \mu_0 H \delta M$ . De cette manière, nous pouvons écrire le travail nécessaire à la complète aimantation de la couche (dans ce cas  $M_{final} = M_s$ ) comme :  $W = \int_0^{M_s} \mu_0 H \delta M$ . La valeur de ce travail représente l'aire entre l'axe des ordonnées, la courbe d'aimantation  $M(H)$  et la droite  $M = M_s$ .

Dans le cas de la réorientation entre l'état planaire (*plan*) et perpendiculaire (*perp*) l'énergie à apporter ( $\Delta E$ ) correspond à la différence des travaux nécessaires à l'aimantation du système dans chacune de ces directions, ainsi :

$$K_{eff} = \Delta E = \int_{perp}^{plan} \delta W = \int_0^{M_s^{plan}} \delta W - \int_0^{M_s^{perp}} \delta W. \quad (1.18)$$

Cette valeur n'est autre que la différence entre les valeurs respectives d'aires entre l'axe des or-

données et la courbe d'aimantation. Nous verrons en annexe D que cette méthode a été l'une des méthodes utilisées pour déterminer avec précision nos valeurs de  $K_{eff}$ .

Cette différence d'aire est représentée en orange clair en figure 1.9 dans le cas d'un matériau à forte PMA. Il arbore donc 100% de rémanence dans la direction facile et la valeur d'aire à calculer est alors une aire triangulaire dépendant surtout de l'allure de la courbe d'aimantation en axe difficile.

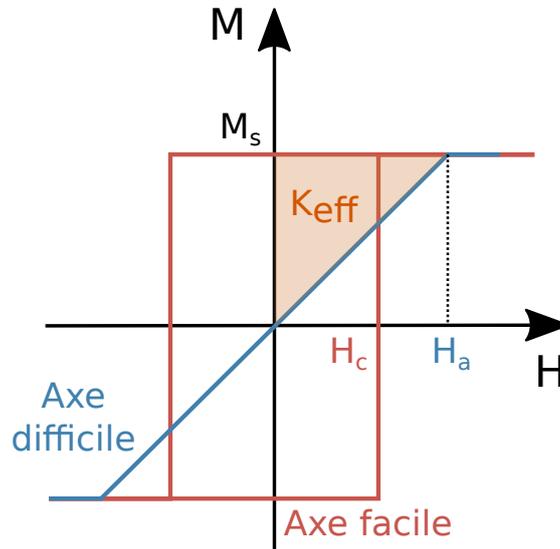


FIGURE 1.9: Représentation schématique d'une méthode pour mesurer l'anisotropie effective  $K_{eff}$ . L'aire en orange entre les courbes  $M(H)$  mesurées selon l'axe facile et difficile vaut  $K_{eff}$ .

#### 1.4.3.2 Modèle de Stoner-Wohlfarth - Renversement de type rotation cohérente

Nous décrivons dans ce paragraphe le procédé de renversement cohérent, qui a été celui utilisé comme deuxième méthode pour déduire le champ d'anisotropie  $H_a$  (et donc l'anisotropie effective  $K_{eff}$ ) de nos échantillons (cela sera décrit aux chapitre 3 et 4, ainsi qu'en annexe D).

Au sein du paysage énergétique décrit précédemment 1.5.1, il peut être parfois difficile de déterminer un état stable minimisant l'énergie totale. Cependant, cela peut être réalisé pour des cas simples. La rotation cohérente de l'aimantation est l'un d'eux et permet de caractériser des structures simples en déduisant la valeur du champ utile au renversement, appelé champ d'anisotropie  $H_a$  dans le cas d'un renversement d'un axe facile vers un axe difficile d'anisotropie (cf section 1.2.1 et 1.4.1).

Ce modèle a été proposé en 1948 par Edmund Stoner et Erich Wohlfarth [20]. De manière générale ce modèle décrit la trajectoire angulaire de l'aimantation d'un système sous l'application d'un champ extérieur. Cette rotation se limite alors à un modèle en deux dimensions, qui définissent le plan de rotation de l'aimantation. L'hypothèse principale utilisée pour ce modèle est que l'aimantation est uniforme au sein du film magnétique, ce qui réduit le nombre de degrés de liberté du problème. Chaque moment magnétique a donc une norme égale à  $M_s$  et il n'y a pas de divergence entre les différents moments. Les termes d'interaction d'échange ne seront donc pas pris en compte dans le bilan en énergie. Les auteurs ont considéré le cas général d'un système elliptique, suffisamment petit pour être considéré comme un macrospin. Ce modèle n'est

donc pas parfaitement applicable aux systèmes de dimensions larges, mais il peut tout de même être appliqué avec précaution pour décrire les volumes où la rotation de l'aimantation s'amorce (appelée volumes de nucléation, cf chapitre 4).

Sous l'application d'un champ magnétique extérieur  $H_{ext}$ , l'énergie du système de volume  $V$  peut donc s'écrire :

$$E_{SW} = K_{eff}V \sin^2(\theta) - VM_s\mu_0 H_{ext} \cos(\theta - \phi), \quad (1.19)$$

avec  $\theta$  l'angle entre l'aimantation et l'axe facile d'aimantation, et  $\phi$  l'angle entre  $H_{ext}$  et ce même axe facile. Le premier terme représente donc le coût en énergie à apporter pour s'éloigner de la direction de l'axe facile, et le second terme représente l'énergie du couple sur l'aimantation par le champ magnétique appliqué, c'est le terme d'énergie Zeeman (décrite en section 1.3.2).

En considérant le cas usuel où  $\phi = \pi$  pour atteindre le renversement complet de l'aimantation et en utilisant l'expression de l'énergie adimensionnée :  $e = E_{SW}/K_{eff} \cdot V = \sin^2\theta + 2h\cos\theta$ , avec  $h = H_{ext}/H_a$  et  $H_a = 2K_{eff}/\mu_0 M_s$ . Cette valeur d'énergie est minimisée pour  $de/d\theta = 0$ , donc pour  $\theta_1 = 0[\pi]$  ou encore pour  $\cos\theta_2 = h$ . L'étude de la dérivée seconde nous montre que  $\theta_1$  est un minimum local et que  $\theta_2$  est un maximum ( $d^2e(\theta_2)/d^2\theta < 0$  pour  $h < 1$ ). La barrière d'énergie à franchir pour amorcer le renversement de l'aimantation entre l'état stable où  $\theta = 0$  et celui où  $\theta = \pi$  peut donc s'écrire :

$$\Delta e = e(\theta_2) - e(0) = \sin^2(\arccos(h)) + 2h\cos(\arccos(h)) - 0 - 2h = (1 - h)^2. \quad (1.20)$$

Le renversement a donc lieu lorsque  $\Delta e = 0$ , donc pour  $h = 1 \Rightarrow H_{ext} = H_a$ . Dans le cas de ce renversement usuel, où l'aimantation reste alignée avec l'axe facile (renversement de  $\theta = 0$  à  $\theta = \pi$ ), ce champ n'est autre que le champ coercitif (cf section 1.2.2).

Dans le cas que nous utiliserons pour la mesure du champ d'anisotropie, nous appliquerons  $H_{ext}$  dans la direction de l'axe difficile et évaluerons quel champ  $H_a$  est utile au renversement de l'aimantation de son axe facile vers l'axe difficile. Ce champ peut alors être perçu comme un champ fictif équivalent, capable de contrebalancer le couple dû à l'anisotropie.

Nous ferons la distinction avec le champ seuil, ou de saturation ( $H_{s\ IP}$ ), qui marque la fin de la rotation de l'aimantation (tous les moments magnétiques de l'échantillon sont alors alignés dans la direction du champ extérieur appliqué).  $H_{s\ IP}$  doit à la fois compenser le champ démagnétisant (présence d'une aimantation macroscopique) et compenser au moyen d'un couple celui égal au rappel de l'anisotropie <sup>14</sup>.

Utiliser ce modèle de rotation cohérente nous a été utile pour déduire de manière correcte nos valeurs de  $H_a$  dans les zones de notre échantillon où ce type de rotation pouvait être considérée (cf chapitre 4). Cette technique d'extraction de valeur a été couplée à la méthode d'intégration des courbes décrite en section 1.4.1 et cela nous a permis de faire une double vérification de nos valeurs.

Généralement dans les systèmes étendus, il est plus difficile de considérer l'aimantation du système entier comme uniforme. Le renversement de l'aimantation se fait par le renversement cohérent d'une portion du système, appelé volume d'activation (ou de nucléation comme mentionné plus tôt), puis par une propagation assistée thermiquement de la paroi ainsi créée. (cf description zone de propagation au chapitre 4). Le modèle de renversement par rotation uniforme s'applique toutefois à ce volume d'activation.

14. La mesure de  $H_{s\ IP}$  a la même allure que  $H_a$  le long de nos échantillons et sera donné en annexe E

## 1.5 Domaines magnétiques

Nous ferons un bilan des différentes énergies magnétiques qui énumérées en section 1.3 et verrons quelles peuvent être les conséquences d'une telle compétition entre ces termes d'énergie.

### 1.5.1 Idée de domaines magnétiques

Nous avons représenté en figure 1.10 l'effet des différentes interactions sur l'aimantation d'une couche ferromagnétique. L'interaction d'échange isotrope tend à aligner les moments magnétiques parallèlement entre eux (cf fig. 1.10 a et section 1.3.1.1). Par ailleurs, dans le cas de films ultra-minces, l'expression d'une anisotropie perpendiculaire magnétique définit un axe facile d'aimantation perpendiculaire au plan de la couche (cf fig. 1.10 b et section 1.4). Cette configuration induit un champ démagnétisant au sein du métal et des charges magnétiques en surface. Il y a donc une compétition directe entre l'interaction dipolaire dont la direction préférentielle est parallèle au plan de la couche afin de minimiser au maximum ces charges induites, et entre l'interaction d'échange isotrope couplée à une anisotropie perpendiculaire forte dont l'orientation préférentielle est perpendiculaire au plan de la couche.

Le système peut alors minimiser son énergie totale en se divisant en domaines magnétiques (cf fig. 1.10 c)) au sein desquels l'aimantation est uniforme et minimise donc l'énergie d'échange et d'anisotropie, tandis que la présence de domaines d'orientation opposée minimise l'énergie dipolaire. Notons cependant que la création de ces domaines magnétiques engendre un coût en énergie (appelée énergie de parois de domaines, qui sera décrite pour le cas particulier de domaines périodiques en labyrinthe dans les paragraphes suivants). Ce coût représente l'énergie induite avec la création de la paroi du domaine pour laquelle l'aimantation est en rotation (coût en énergie d'échange) et s'éloigne de l'axe facile d'anisotropie (coût en anisotropie).

Enfin, l'application d'un champ magnétique extérieur vient favoriser l'orientation de certains domaines par rapport aux domaines opposés (cf fig. 1.10 d)).

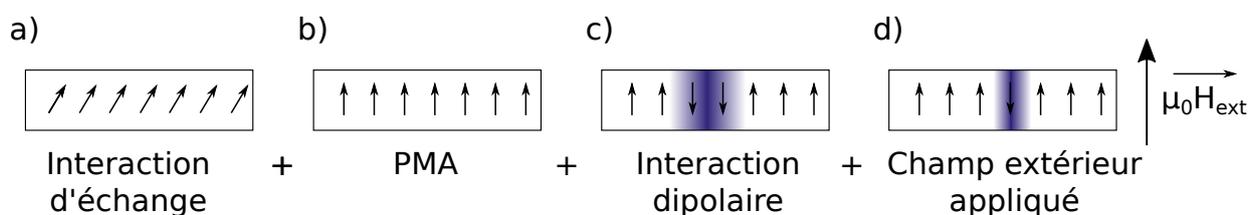


FIGURE 1.10: Résumé des effets des différentes énergies (actions) sur les moments magnétiques d'un système à forte anisotropie perpendiculaire. La division en domaines magnétiques est représentée en c). Figure adaptée de [21].

Le type de parois de domaines qui peuvent être obtenues diffère selon les dimensions géométriques du système. Nous prendrons ici l'exemple d'un film dont l'interaction dipolaire est dominante (faible anisotropie) et dont les moments sont alignés parallèlement à la couche. La paroi de type Bloch (cf fig. 1.11 a)) est généralement obtenue dans les matériaux massifs. Le retournement de l'aimantation se fait alors par un changement d'axe (dans notre exemple,  $\vec{M}$  se retourne en passant de planaire à perpendiculaire à la couche). Dans les matériaux massifs (généralement pour  $t > 10nm$ ), cette configuration est préférée car la paroi peut se répandre sur des distances bien plus importantes que la largeur du domaine  $w$ . Dans le cas des films minces à anisotropie planaire, une paroi de Bloch va engendrer des charges magnétiques de surface (cf fig. 1.11 a), cette configuration est donc moins adaptée dans le cas des films minces ( $t < 10nm$ ).

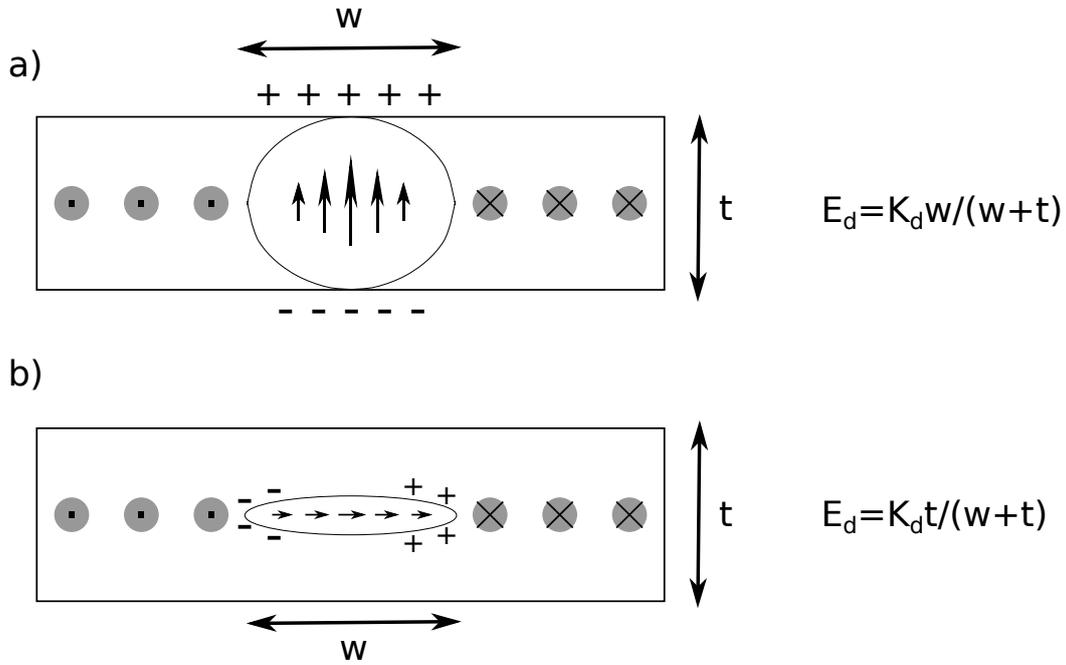


FIGURE 1.11: a) Paroi de Bloch ; b) Paroi de Néel.

$w$  est la largeur de la paroi et  $t$  l'épaisseur du film magnétique. L'aimantation est parallèle à la surface du film dans ce cas.

A l'inverse, dans le cas de films minces (pleine plaque) à anisotropie perpendiculaire, la paroi de type Bloch sera toujours celle préférable en énergie, excepté dans le cas spécial où le film possède un facteur *DMI* assez fort pour réduire l'énergie de la paroi de type Néel, présentée ci-dessous (cf détails au chapitre 5).

En se représentant une paroi de domaine comme un cylindre d'aimantation perpendiculaire (cf fig. 1.11), de surface de base  $w \cdot t$ , Louis Néel calcula les énergies dipolaires surfaciques pour deux cas. Il déduit que dans le cas de la paroi de type Bloch, les charges magnétiques accumulées représentaient une densité d'énergie égale à  $K_d \frac{w}{w+t}$ . Il était alors plus préférable, dans le cas des épaisseurs fines ( $t < w$ ), que la rotation de l'aimantation se fasse dans le plan du film. La densité d'énergie alors engendrée correspond à  $K_d \frac{t}{w+t}$ . Le vecteur aimantation n'est plus uniforme en translation selon l'axe compris dans le plan du film et perpendiculaire à l'aimantation, mais la quantité de charges accumulées est nulle à la surface de l'échantillon. Ces parois sont appelées parois de Néel (cf fig. 1.11 b) et sont celles que nous rencontrerons dans le cas de nos films ultra-minces (cf chapitre 5).

La configuration magnétique d'un film mince est donc la structure définissant au mieux l'équilibre entre toutes les énergies magnétiques. Elle est très dépendante de la température ainsi que des interfaces du film mince. Le bilan des énergies intervenant dans la stabilisation de structures en labyrinthes de domaines périodiques est maintenant décrit. Il nous permettra d'exprimer par la suite (cf chapitre 5), et grâce à la connaissance de la variation des paramètres mesurables, la variation de l'énergie nécessaire à la création des parois de ces domaines le long de nos échantillons.

## 1.5.2 Modèles utilisés pour la stabilisation de domaines périodiques en labyrinthe : historique

De nombreuses études ont porté sur ce type de configuration en domaines magnétiques à polarisation alternée. Nous ferons ici un résumé des différentes étapes qui ont permis de donner une expression pour l'énergie des parois de domaines qui sont créées au sein de cette structure. Nous définirons les différents termes d'énergie à considérer pour chercher à stabiliser ce genre de configuration magnétique. Le développement des expressions ne sera pas donné ici par mesure de clarté. Nous nous contenterons de décrire dans les grandes lignes les différents cas traités et de préciser quel modèle nous avons utilisé dans le cadre de ma thèse.

Nous verrons au chapitre 5 que notre structure est en constante évolution le long d'un gradient d'oxydation, nos termes d'énergie ne sont donc pas fixes le long de notre échantillon et ils varient avec les propriétés magnétiques de la couche de  $Co$ . Ceci sera décrit en section 5.2.5, au chapitre 5.

### 1.5.2.1 Définition des grandeurs utiles intervenant dans les différents modèles

Nous allons définir dans ce paragraphe les paramètres à considérer pour établir les différents modèles.

- **Profil d'aimantation** : Le profil d'aimantation utilisé pour les cas que nous résumerons ici, a été introduit par Charles Kittel (cas *II* en ref. [22]). Dans ce type de structure de domaines désaimantés en labyrinthe, le profil de l'aimantation alterne entre les directions perpendiculaires  $+z$  et  $-z$ , avec une période  $2L$  (cf fig. 1.12). L'aimantation est considérée comme uniforme au sein de chacun des domaines (donc pas d'expression de domaines de fermeture, avec une composante de l'aimantation planaire proche des interfaces).

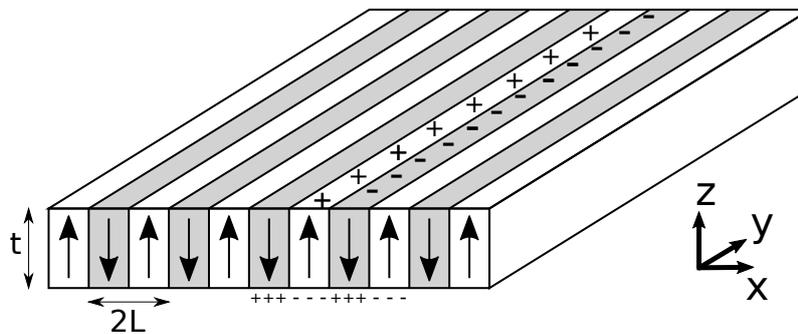


FIGURE 1.12: Profil de l'aimantation des domaines périodiques en bandes, dans le cas d'une anisotropie uniaxiale assez forte. Représentation des charges magnétiques (pôles) induites sur les interfaces.

La distribution des "charges magnétiques" induites aux interfaces peut donc être assimilée à une fonction créneau d'amplitude  $\pm M_s$ . Et l'expression du champ induit  $H_z_{ind}$  peut être retrouvée en réalisant le développement en série de Fourier de cette fonction créneau selon la direction  $x$  [22].

- **Rapport entre les dimensions du film et les largeurs de domaines** : Les dimensions du problème sont la largeur des domaines  $L$ , l'épaisseur du film de  $Co$ ,  $t$ , ainsi que la largeur

des parois de domaines  $\delta_w$ . Nous prendrons comme approximation que  $\delta_w$  (de l'ordre de 5 – 10nm dans notre cas) est négligeable devant la période des domaines (qui est de l'ordre de 2 – 3 $\mu$ m, voir fig. 5.1 du chapitre 5 ou G.4 en annexe).

Nous décrirons donc les différents modèles qui ont été développés pour différente gamme du rapport  $t/L$ .

- **Facteur de qualité  $Q$  et effet de  $\mu$**  : Dans le cas de films magnétiques présentant une anisotropie perpendiculaire, la taille et l'aspect des domaines sont fonctions du facteur de qualité [23] :  $Q = K_s/(tK_d)$ , avec  $K_s$  l'anisotropie de surface et  $K_d$  l'anisotropie de forme. Dans le cas où  $Q < 1$ , l'anisotropie de forme  $K_d$  est dominante et l'aimantation s'oriente dans le plan de l'échantillon. Dans le cas inverse, l'orientation adoptée par l'aimantation est l'orientation perpendiculaire à la couche.

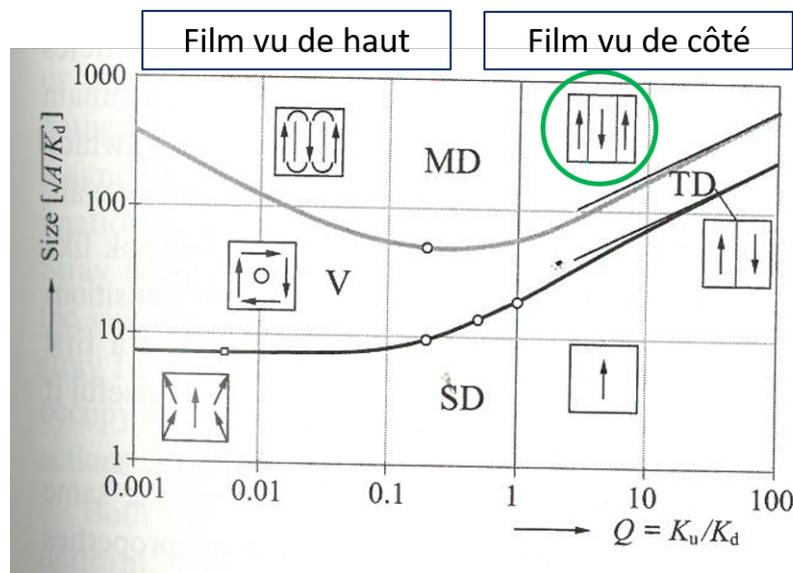


FIGURE 1.13: Configuration magnétique attendue en fonction de la taille des domaines (en unité de  $\sqrt{A_{ex}/K_d}$ ) et du facteur de qualité  $Q$  du système [23,24].  $MD$  = multi-domaines,  $V$  = Vortex,  $TD$  = double domaines et  $SD$  = simple domaine. La configuration des échantillons que j'ai étudiée au chapitre 5 est mise en évidence (cercle vert). Il est important de noter que cette étude avait été réalisée pour un système cubique [23,24], ce qui est éloigné de notre cas d'étude de films minces, nous avons donc reporté sur la figure quelle serait l'équivalent des coupes dans le cas d'un film mince.

Dans notre cas, l'anisotropie uniaxiale est assez forte pour définir un axe facile perpendiculaire à la couche : la déviation de l'orientation des moments magnétiques par rapport à la direction préférentielle (perpendiculaire) est alors faible. Cependant, sa valeur reste proche de l'anisotropie de forme  $K_d$ . De plus, la taille des domaines étant importante par rapport à la longueur d'échange dipolaire ( $\sqrt{A_{ex}/K_d}$ ), nous nous trouvons bien dans les conditions nécessaires à l'expression d'une structure en multi-domaines ( $MD$ ) représentée en figure 1.13.

Le champ induit  $H_{z\ ind}$  par les charges magnétostatiques peut alors être calculé par une méthode appelée méthode de l'effet  $\mu$  [23]. Cette méthode permet de prendre en compte de faibles déviations éventuelles de l'aimantation par rapport à l'axe facile, en définissant

au préalable un tenseur de perméabilité  $\bar{\mu}$  dans les trois directions de la couche.

Ce tenseur peut être ramené à un facteur  $\mu$  dans le cas des films uniaxes, qui s'exprime comme :  $\mu = 1 + 1/Q = 1 + \frac{M_s}{M_s + H_a}$ . Ce facteur entrera dans l'expression de l'énergie de paroi de domaines.

### 1.5.2.2 Origine des domaines périodiques en bandes (stripes) et calculs de champ démagnétisant

Les termes d'énergie entrant dans l'expression de l'énergie totale du système  $E_t$  ont été définis par Kittel [22] : l'énergie des parois entre domaines magnétiques  $E_\omega$ , l'énergie démagnétisante liée aux charges magnétiques de la configuration en domaines  $E_d$  et l'énergie d'anisotropie  $E_{anis}$ .  $E_t$  doit être minimisée pour atteindre une configuration stable, ceci en trouvant le bon équilibre entre les trois termes d'énergie.

L'aimantation étant considérée comme quasiment uniforme et perpendiculaire dans les domaines,  $E_{anis}$  est considérée comme nulle. La taille des parois de domaines étant faible, il y a que très peu de moments orientés autrement que selon l'axe facile perpendiculaire, donc le coût en énergie d'anisotropie est extrêmement faible.

L'énergie des parois de domaines en bandes peut être exprimée comme :  $E_\omega = \sigma_\omega S$ , avec  $S$  la surface totale des parois de domaines dans le système et  $\sigma_\omega$ , l'énergie surfacique des parois de domaines en  $J/m^2$ . Ainsi, l'énergie des parois par unité de surface du film est :  $e_\omega = \frac{\sigma_\omega t}{L}$  (en supposant des stripes régulières et parallèles comme représenté en figure 1.12).

Fox [25] met l'accent dès son introduction sur le fait que l'énergie de la structure en domaines d'un matériau ferromagnétique est très dépendante de son énergie démagnétisante. En effet, il explique que cette énergie peut être contrôlée dans une large mesure par ce qu'il nomme les pôles libres ("charges magnétiques") aux extrémités du matériau, ces pôles libres induisant des discontinuités (variation de direction) dans la composante  $M_z$  de l'aimantation. Cette interaction ne peut jamais être négligée car elle apporte un couplage qui est toujours significatif, même s'il peut être considéré comme faible face à l'échange direct entre deux proches voisins (moments magnétiques).

Nous pourrions résumer en disant que les calculs concernant les champs démagnétisants peuvent être délicats, mais qu'il existe certaines règles que l'on peut appliquer selon les cas d'étude rencontrés. Par exemple, pour des problèmes présentant une certaine période, les transformations en séries de Fourier sont un choix naturel [22].

Kittel [22] traita d'abord le cas des films à forte épaisseur ( $t \gg L$ ) en 1946. Il considéra des domaines parallèles et négligea l'énergie démagnétisante au sein du film, les charges magnéto-statiques des interfaces opposées étant trop éloignées dans le cas de films épais. Il exprima donc son énergie totale en fonction des termes d'énergie par unité d'aire,  $\sigma_\omega$  et  $\sigma_d$  :

$$e_t(L) = \sigma_\omega t/L + 2\sigma_d, \quad (1.21)$$

avec  $\sigma_d = 0,85M_s^2 L$  l'énergie démagnétisante par unité d'aire pour une interface [22]. Cette valeur est donc multipliée par deux dans le cas de deux interfaces (surfaces du film magnétique). Il

déduit ainsi une dépendance  $L(t)$  telle que :  $L = \sqrt{\sigma_\omega t / (1, 7M_s^2)}$ .

Deux études ont été réalisées en parallèle par la suite. Rowlands lors de ses travaux de thèse en 1956, ainsi que Mâlek et Kambersky en 1958 [26] se sont placés dans une gamme d'épaisseur plus faible en évaluant la structure en domaines d'un film pour lequel  $t/L \approx 1$ . Ils ont exprimé de manière classique l'énergie démagnétisante d'un système de domaines parallèles : en définissant le potentiel magnétostatique à chacune des interfaces et en utilisant les conditions aux bornes de leurs différentes expressions.

A l'époque, Mâlek [26] décrivait déjà que dans le cas des films minces ( $t/L < 1$ ), l'expression de l'énergie de paroi ne pouvait plus être sommée de manière indépendante dans l'expression de l'énergie totale car  $\delta_\omega$  ainsi que l'énergie des parois étaient alors fonctions de l'épaisseur du film lui-même. Depuis, de nombreux modèles cherchent à définir l'énergie totale de ce type de système lorsque la largeur de la paroi de domaines se trouve n'être plus négligeable [27–29]. Dans notre cas, la largeur de nos domaines étant très importante, nous nous tiendrons à l'approximation faite plus haut de considérer des parois de domaines suffisamment fines par rapport à  $L$ .

Le modèle le plus complet a été déduit par Kooy et Enz [30] en 1960. Au cours de leurs travaux, ils ont généralisé l'expression de l'énergie démagnétisante à toutes les gammes d'épaisseur, et ont ajouté à l'expression de  $E_t$  le terme d'énergie Zeeman  $E_z$  à prendre en compte lors de l'application d'un champ magnétique perpendiculaire. Ce modèle a été la base de nombreux travaux [31–33].

L'effet de  $\mu$  a aussi été développé dans leurs travaux, même s'il est négligé pour l'expression finale. Cet effet sera généralisé par la suite par Draaisma [33].

Dans le cas de domaines désaimantés avec une rémanence nulle, et en considérant le cas simplifié où  $\mu = 1$  (forte PMA), ils déduisent une expression pour l'énergie démagnétisante de ce type de système :

$$E_d = 8K_d L / \pi^3 \sum_{n=1,3,5,\dots}^{\infty} n^{-3} \left[ 1 - \exp\left(\frac{-\pi n t}{L}\right) \right]. \quad (1.22)$$

Ceci, toujours en utilisant le profil d'aimantation en créneau défini au début de cette section, qui est décomposé en série de Fourier.

Ensuite, un travail de comparaison des énergies de deux types de structures a été réalisé à la fois par Yafet et Gyorgy [27] (1988) et d'un autre côté par Czech et Villain [34] (1989). Ils cherchaient à définir quelle structure était la plus stable entre la configuration en bandes parallèles ou la configuration de type "échiquier". Leurs conclusions se sont trouvées être différentes. Cela a conduit à l'étude de Kaplan et Gehring [35] en 1993 dont le modèle a servi de base à celui que nous avons utilisé dans le cadre de cette thèse.

Leur travail a consisté à analyser numériquement l'expression de l'énergie démagnétisante de Kooy [30] (1.22) en passant d'un modèle discret de décomposition en sommes finies, à un modèle continu d'intégration du profil d'aimantation.

De par leur travail numérique, Kaplan et Gehring [35] ont pu appuyer la thèse de Yafet [27], qui annonçait une énergie plus faible pour le système en bandes, et ont aussi pu fournir un modèle analytique pour exprimer de manière directe la taille des domaines attendue pour un film ultra-mince.

$$L = 0,955 t \exp\left(\frac{\pi D_0}{t}\right), \quad (1.23)$$

avec  $D_0 = \sigma_\omega / 2 K_d$ , la longueur caractéristique du système [23].

Nous avons représenté en figure 1.14 le profil attendu pour  $L(t)$  selon les différentes gammes d'épaisseurs et les différents modèles considérés. Il est facilement notable que les profils attendus sont très différents selon la gamme d'épaisseur considérée. Le modèle défini par Kittel s'appliquant pour les fortes épaisseurs est une fonction monotone de l'épaisseur du film. Alors que les modèles de Kooy et Enz, ainsi que de Kaplan et Gehring présentent un minimum local et deux régimes différents selon la valeur d'épaisseur.

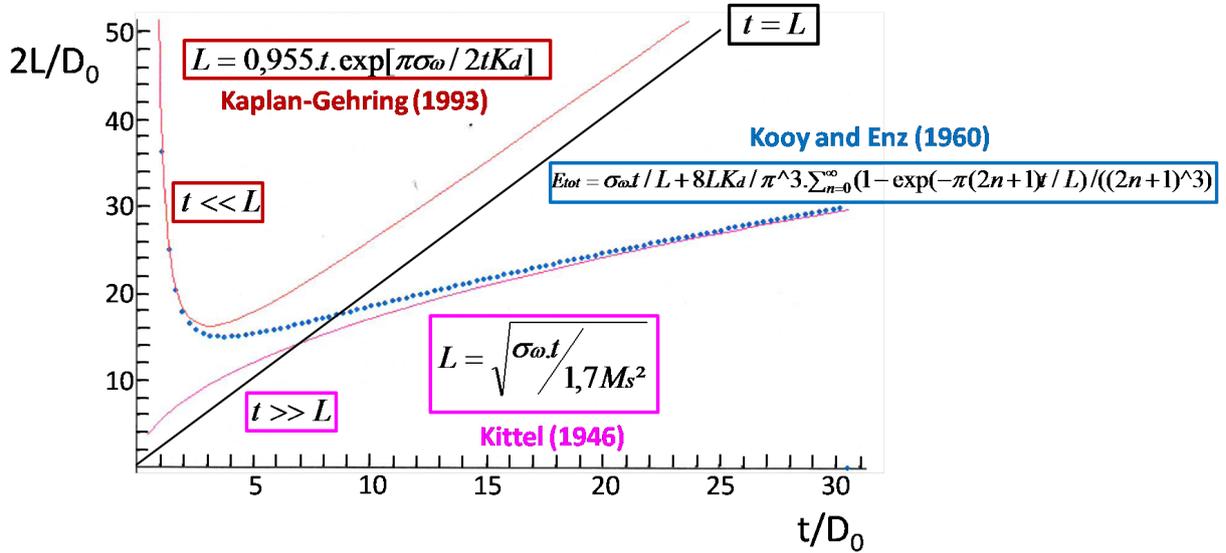


FIGURE 1.14: Période des domaines en fonction de l'épaisseur du film. Les grandeurs sont normalisées par  $D_0$ . Les expressions sont rappelées pour les trois modèles.

Nous précisons au chapitre 5 quel modèle nous avons utilisé pour décrire la structure obtenue dans notre système.



## Chapitre 2

# État de l'art : effets de champs électrique et stabilisation de skyrmions

Nous présenterons dans un premier temps un résumé des études de contrôle du magnétisme par champ électrique, puis nous développerons dans une seconde partie un bref historique concernant l'observation et la manipulation de skyrmions. Nous insisterons tout particulièrement sur le contexte de leur nucléation à l'aide d'un champ électrique. Nous devons noter ici, que l'état de l'art concerne les travaux réalisés au début de ma thèse. Les travaux réalisés en parallèle au cours de ces trois ans seront indiqués au fur et à mesure dans les chapitre 4 et 5.

### 2.1 Modifications des propriétés magnétiques : mises en évidence expérimentales

Le contrôle du magnétisme par champ électrique (cf fig. 2.1) est un vaste domaine de recherche de nos jours. Cela est dû au fait qu'il pourrait engendrer un très fort impact dans le développement de dispositifs à basse consommation d'énergie pour la spintronique. Nous choisirons d'en décrire deux : la *MRAM* (pour Magnetic Random Access Memory en anglais) et la mémoire de type racetrack pour laquelle la manipulation de skyrmions pourrait être une avancée. Ces dispositifs n'ayant pas été au centre de mon travail d'étude, ils seront brièvement présentés.

#### 2.1.1 Contexte de la spintronique

La spintronique, ou électronique de spin, est décrite comme le fait d'exploiter à la fois la charge de l'électron, et son moment magnétique intrinsèque, ou spin. Dans les métaux de transition utilisés en spintronique, il existe un couplage entre les propriétés de conduction et les propriétés magnétiques des matériaux. Ce couplage est à l'origine de nombreuses applications de la spintronique (disques durs, capteurs,...).

*MRAM* : Les technologies nouvelles de mémoires magnétiques ultra-denses et ultrarapides de type *MRAM* sont l'une des technologies les plus prometteuses issues de la spintronique qui pourraient devenir des mémoires universelles alliant à la fois une grande densité et une grande vitesse. Leur unité de base est une jonction tunnel magnétique (*MTJ*, pour Magnetic Tunnel Junction en anglais) dont deux états de résistance distincts (haut ou bas) permettent le stockage de l'information. Celui-ci est dépendant de l'orientation relative de l'aimantation des électrodes ferromagnétiques. Une *MTJ* se compose de deux couches ferromagnétiques séparées par une barrière

isolante très fine (généralement, un oxyde). Une des couches présente une orientation d'aimantation bloquée dans une direction et est utilisée comme électrode de référence. La deuxième, la couche libre, présente une direction d'aimantation qui peut être retournée. Les électrons peuvent traverser la barrière par effet tunnel et leur probabilité de passage dépend de l'orientation relative de l'aimantation des deux couches magnétiques : c'est la magnétorésistance tunnel. Il y a donc deux états de résistance différents pour des aimantations parallèles ou anti-parallèles.

La manipulation de l'aimantation de la couche libre peut se faire de différentes manières, dont celle consistant à appliquer un champ magnétique local, ou encore celle consistant à injecter dans la *MTJ* un courant électrique polarisé en spin qui peut induire un retournement de l'aimantation par transfert de spin (*STT*). Cette dernière méthode est utilisée actuellement pour la fabrication des *STT – MRAM*.

Pour des raisons de stabilité thermique, il est nécessaire que la couche libre possède une forte anisotropie magnétique, ce qui permet à l'aimantation de rester bloquée dans la direction souhaitée, et donc de conserver l'information stockée. Or, une large anisotropie induit également une grande barrière d'énergie à dépasser pour le renversement de l'aimantation et donc une forte consommation de courant. Une *STT – MRAM* présente donc l'avantage de n'avoir recours à aucun champ magnétique extérieur supplémentaire. Cependant, de fortes densités de courant sont encore requises pour induire ce renversement d'aimantation lors du procédé d'écriture. Un des défis actuels dans ce domaine consiste à réduire ces valeurs de courant critique de retournement de l'aimantation de la couche libre, sans pour autant perdre cette stabilité thermique.

Le succès de la technologie *MRAM* issue de la spintronique repose donc sur le fait d'être capable de piloter l'aimantation de manière efficace et peu coûteuse. L'idée du contrôle de l'aimantation par un champ électrique a donc vu le jour. De plus, en vue de concevoir des dispositifs fonctionnels, de nombreux critères doivent être respectés comme par exemple leur fonctionnalité à température ambiante. Ces effets de champ électrique pourraient permettre, pour les *STT – MRAM* par exemple, d'abaisser la barrière d'énergie temporairement lors de l'écriture tout en gardant une bonne stabilité thermique pour le stockage de l'information à long terme.

**Mémoire de type racetrack et mouvement de domaines/skyrmions :** La mémoire de type racetrack a été proposée par S. Parkin en 2008 [36] et se base sur les mouvements des parois de domaines magnétiques<sup>1</sup> pour la rétention d'information. Elle est inspirée des mémoires à bande, mais dans ce cas-ci, l'information stockée se déplace dans la bande, sans déplacement physique de celle-ci. Les avantages sont donc nombreux car une toute autre configuration est envisagée par rapport aux mémoires commercialisées de nos jours. Ce serait un dispositif entièrement solide, ne se dégradant pas à l'utilisation. La lecture et l'écriture de l'information se feraient sans recourir à un déplacement mécanique, contrairement aux disques durs commercialisés de nos jours. Une plus grande durée de vie, ainsi qu'un gain en rapidité pourraient être envisagés.

Nous verrons en section 2.1.3.5 comment Schellekens et al. [37] ont démontré le contrôle de la vitesse des parois de domaines avec l'application d'un champ électrique. Ils ont proposé un prototype de mémoire racetrack utilisant localement une application de tension qui permettrait de diriger la paroi dans une orientation donnée, dépendante du signe de la tension appliquée (voir figure 5 en ref. [37]). Nous pourrions imaginer remplacer les parois de domaines par d'autres configurations micromagnétiques, comme les skyrmions, au sein des prototypes de type racetrack. Ceci dans le but d'augmenter la densité et la rapidité d'écriture : les skyrmions sont des

---

1. Considérés alors comme des bits d'information

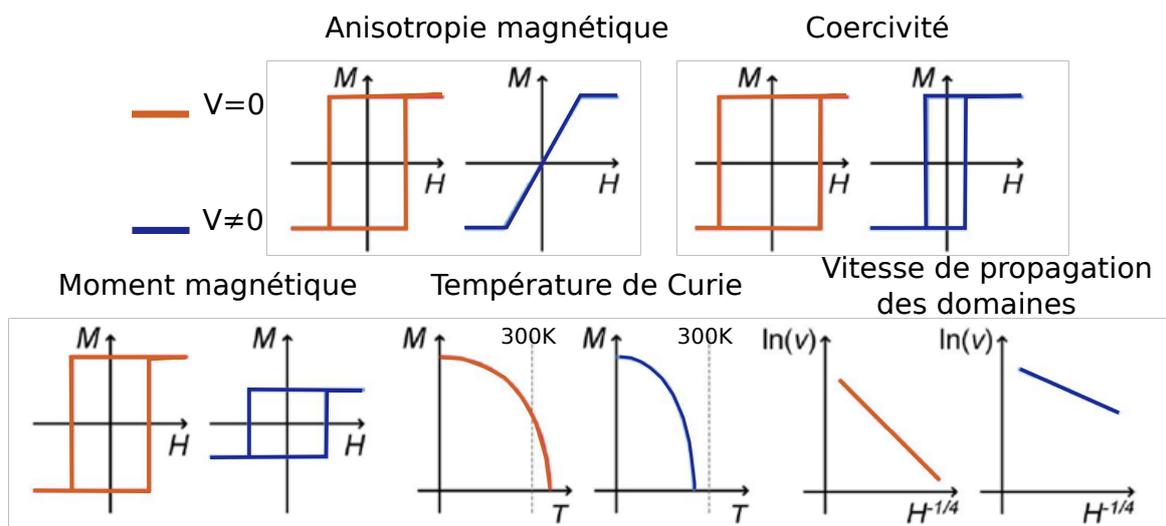


FIGURE 2.1: Paramètres magnétiques qui peuvent être affectés par l'application d'un champ électrique. *Figure adaptée de [47] et de [48]*

objets généralement très petits (échelle nanométrique) dont la vitesse de déplacement est bien plus forte que celle d'une paroi de domaines. Leur déplacement à l'aide d'un courant a déjà été prouvé et ne sera pas à l'étude de cette thèse. Nous nous concentrerons sur leur création, de manière contrôlée, à l'aide d'un champ électrique.

## 2.1.2 Premières mises en évidence expérimentales

Le contrôle du magnétisme à l'aide d'un champ électrique se rapporte plus largement à l'effet magnétoélectrique. Des variations de nombreux paramètres magnétiques ont été observées : l'anisotropie magnétique [38–42], l'aimantation à saturation [43–45] ainsi que la  $T_c$  [43, 44, 46] en font partie. Ces différents paramètres magnétiques variables sous champ électrique sont résumés en figure 2.1 et nous développerons chacun de ces aspects dans les paragraphes à venir.

Ce couplage magnétoélectrique a été observé à la fois dans les matériaux dits de "phase unique", que sont les semi-conducteurs magnétiques dilués [43, 45, 49], ou les multiferroïques [50, 51], et dans les matériaux composites magnéto-électriques, tels que les hétérostructures "ferroélectrique/ferromagnétique" [47, 48]. Cependant, les matériaux de phase unique sont des structures complexes, pour lesquelles de nombreux problèmes de croissance peuvent être rencontrés. De plus, leur dépôt est réalisé par pulvérisation à chaud, ce qui n'est pas compatible avec les méthodes utilisées dans l'industrie. Enfin, ces matériaux présentant des propriétés magnéto-électriques ont parfois une  $T_c$  inférieure à l'ambiante. Et, l'étude des matériaux composites (hétérostructures) s'est révélée confrontée à deux mécanismes en parallèle : le couplage magnéto-électrique, mais aussi la contrainte induite dans le système du fait de la réponse piézoélectrique du matériau ferroélectrique.

Notre contexte de travail sera donc de se débarrasser de ces effets de contraintes et de se rapprocher au maximum des conditions de dépôt utilisées dans l'industrie. Pour cela, nous étudierons le couplage magnétoélectrique au sein de structure mettant en contact une couche mince de métal ferromagnétique avec un matériau diélectrique (oxyde isolant), pour lesquels de nombreux effets de champ électrique ont déjà été reportés. Ils sont déposés à température ambiante par pulvérisation cathodique (compatible avec les méthodes utilisées aujourd'hui).

### 2.1.3 Effets observés sur des couches minces de types ferromagnétique/oxyde

Les premières études d'effets de champ électrique sur les propriétés magnétiques des matériaux ont été réalisées sur des films minces, dont la croissance avait été réalisée par épitaxie. Les études sur des films polycristallins ont ensuite suivi. Elles sont plus compatibles avec les méthodes de croissance actuellement utilisées dans l'industrie (pulvérisation).

#### 2.1.3.1 Modification du champ coercitif du ferromagnétique - 2007

La première mise en évidence d'un effet de champ électrique modifiant les propriétés magnétiques d'un métal ferromagnétique a été réalisée par Weisheit et al. en 2007 [52] sur des films minces épitaxiés de  $FePt$  et de  $FePd$  de 2 et 4nm. Ils ont montré une modification réversible d'environ  $-4,5\%$  de la coercitivité pour les couches de  $FePt$  et de  $+1\%$  pour les couches de  $FePd$ , pour une différence de potentiel appliquée égale à  $+600mV$  et pour les couches de 2nm. Et ce, au sein d'un système de type ferromagnétique/électrolyte et à température ambiante (cf fig. 2.2 b)). L'effet se trouvait être plus faible pour les couches plus épaisses. Les constantes diélectriques des électrolytes étant bien plus importantes que celles obtenues dans les diélectriques isolants solide, l'utilisation d'un électrolyte présentait un avantage pour mettre en évidence les effets de charges lors de cette étude.

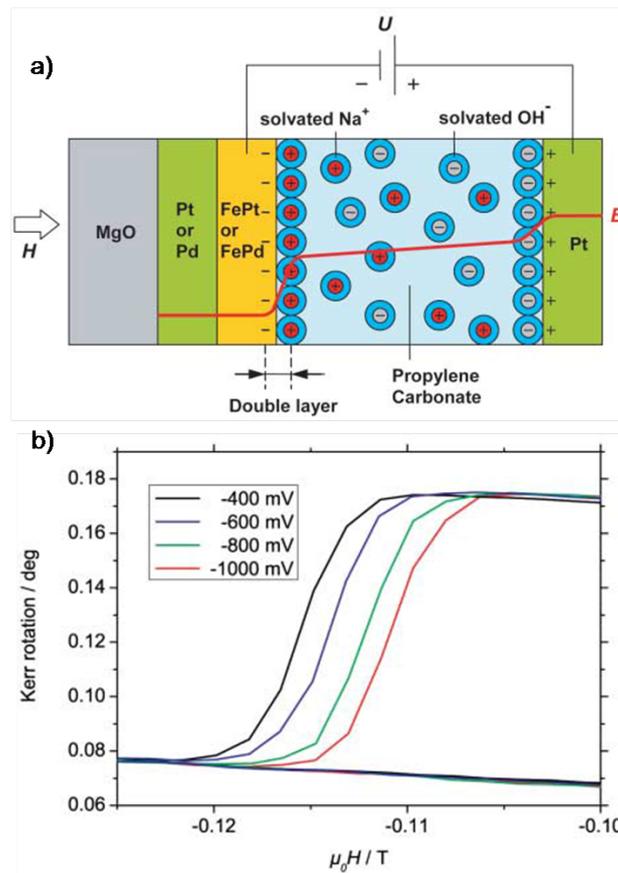


FIGURE 2.2: a) Cellule électrolytique et mise en évidence de la double couche électrolytique, utilisée pour l'étude [52].

b) Renversement de l'aimantation pour la couche de 2nm de  $FePt$  pour différentes valeurs de tensions appliquées.

L'électrolyte choisi pour cette étude a été le carbonate de propylène  $C_4H_6O_3$  du fait de sa forte constante diélectrique ( $\approx 66$ ). Le mélange a été rendu pauvre en eau avec l'ajout de morceaux de sodium  $Na$  comme desséchants, qui se sont solvatés. Les ions  $Na^+$  obtenus ont été utiles dans la formation de la couche ionique isolante d'ions face à  $FePt$  (ou  $FePd$ ). Cette couche est appelée la double couche électrolytique et est utile au confinement de l'effet de champ électrique proche des interfaces métal/liquide (cf fig. 2.2 a)). La tension était appliquée à travers cette cellule électrolytique, avec une contre-électrode de  $Pt$  bien plus large que l'électrode ferromagnétique, de manière à avoir un maximum d'effet à l'interface  $FePt$ /électrolyte (ou  $FePd$ /électrolyte).

En prenant comme approximation que la coercivité peut être considérée comme directement proportionnelle à l'anisotropie, ils ont pu vérifier le signe et l'ordre de grandeur de leur variation d'anisotropie.

Cette première étude fructueuse marque le début d'un grand nombre d'études visant à faire varier les différents paramètres magnétiques de manière efficace, et d'en induire un renversement de l'aimantation.

### 2.1.3.2 Modification de l'énergie d'anisotropie magnétique - 2009

Les études suivantes ont permis d'exploiter ces premiers résultats au sein d'une structure entièrement solide, une barrière diélectrique venant remplacer l'électrolyte de l'étude précédente [38, 53].

Maruyama et al. [38] ont été capables de démontrer le contrôle direct de l'anisotropie par champ électrique et Shiota et al. [53] ont mis à profit cette variation d'anisotropie afin de réaliser un contrôle par champ électrique de la direction de l'axe de facile aimantation de leur système.

Le système étudié par Maruyama et al. [38] consiste en un condensateur parallèle au sein duquel l'une des électrode est un film ferromagnétique mince. Dans leur cas, du  $Fe$  déposé par épitaxie a été utilisé<sup>2</sup>. La gamme d'épaisseur a été choisie de sorte que le film de fer soit sujet à une anisotropie perpendiculaire modérée, de manière à ce que les variations de cette dernière soient détectables plus facilement. Nous avons décrit au chapitre 1 que  $K_{eff}$  était composée d'un terme de surface  $K_s/t$  et d'un terme de volume  $K_v \approx K_d$ . Une anisotropie perpendiculaire modérée signifie que  $K_{eff}$  est légèrement supérieur à 0. Le champ électrique étant principalement actif sur le terme de surface, ici  $K_s$  (voir paragraphes suivants), une variation même légère de ce dernier peut être capable de changer le signe de l'anisotropie effective totale  $K_{eff}$ , et donc de provoquer une réorientation de la direction facile de l'aimantation. Ceci se remarque alors extrêmement bien lors de l'enregistrement du cycle d'effet Kerr polaire (courbe d'aimantation). Le film de fer est ensuite recouvert d'une fine couche de  $MgO$  ( $\approx 10nm$ ), puis d'une couche épaisse de polyimide ( $\approx 1500nm$ ), utilisé comme diélectrique pour l'application de fortes valeurs de tensions, mais dont la constante diélectrique est assez faible comparée à celle du  $MgO$  ( $\epsilon_r MgO = 9, 8 > \epsilon_r polyimide = 3, 4$ ).

La tension était appliquée grâce à une contre-électrode d' $ITO$ <sup>3</sup> (cf fig. 2.3 a), qui est un métal conducteur qui a la particularité d'être transparent (cf chapitre 5). La technique de mesure utilisée a été un microscope optique à effet Kerr en configuration polaire<sup>4</sup> pour l'enregistrement des cycles d'hystérésis du fer sous l'influence d'un champ électrique, avec un champ magnétique ap-

2. entre 2 et 4 monocouches

3. Pour Oxyde d'indium-étain

4. cf chapitres suivants pour la description et l'utilisation

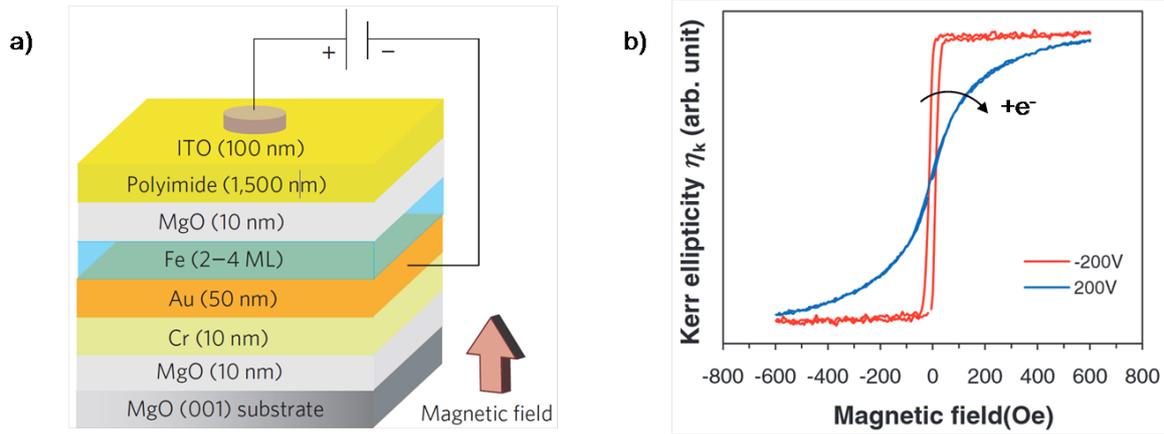


FIGURE 2.3: Deux études de la littérature :

a) Système mesuré par Maruyama et al. [38].

b) Courbes d'hystérésis enregistrées pour un film de  $Fe_{80}Co_{20}$  de  $\theta$ ,  $58nm$  d'épaisseur, mesurées sous l'application de tension positive (courbe bleue) et négative (courbe rouge). Ce travail illustre le phénomène de contrôle de l'axe de facile orientation de l'aimantation dans l'étude de Shiota et al. [53].

pliqué perpendiculairement à la structure. La modification des cycles Kerr avec la tension indique clairement une variation de l'anisotropie perpendiculaire (de surface) du système. Cette variation avait été estimée à  $\beta_{Maruyama} \approx 90 f J / (V.m)$ , avec  $\beta = \frac{\Delta K_s}{\Delta E} \left( \frac{J/m^2}{V/nm} \right)$ . Nous reviendrons dans les paragraphes suivants sur l'explication donnée par les auteurs sur ces observations.

Shiota et al. [53] ont ensuite réalisé une étude similaire sur un système équivalent, en remplaçant la couche fine de fer par un alliage de type  $Fe_{80}Co_{20}$  d'épaisseur variable. Leur étude sous champ électrique a permis de mettre en évidence que le pilotage de l'anisotropie perpendiculaire par des effets de champ électrique permettait de contrôler l'orientation de la couche magnétique (cf fig. 2.3 b). Ce contrôle de l'axe de facile aimantation a mené à une idée de contrôle du renversement de l'aimantation par champ électrique, assisté par l'application d'un champ magnétique [53].

La forte analogie entre le système de condensateur parallèle introduit par Maruyama et al. [38] et les  $MTJs$  en a fait un système standard à utiliser pour les études des effets magnéto-électriques.

Endo et al. [41] ont donc utilisé un système équivalent pour démontrer que des effets du même ordre étaient obtenus pour des couches déposées par pulvérisation. En effet, ils ont déduit une variation d'anisotropie magnétique perpendiculaire de  $\beta_{Endo} = 33 f J / (V.m)$  au sein d'une couche d'orientation planaire de  $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$  ( $1, 33nm$ ). Ils ont observé que pour leur interface de  $CoFeB/MgO$ , l'application d'un champ électrique négatif, donc un retrait d'électrons à l'interface ferro/oxyde venait renforcer l'anisotropie magnétique perpendiculaire.

Depuis, les études des effets de champs électrique se sont focalisées surtout sur des couches déposées par pulvérisation, ce qui devenait très intéressant pour les applications.

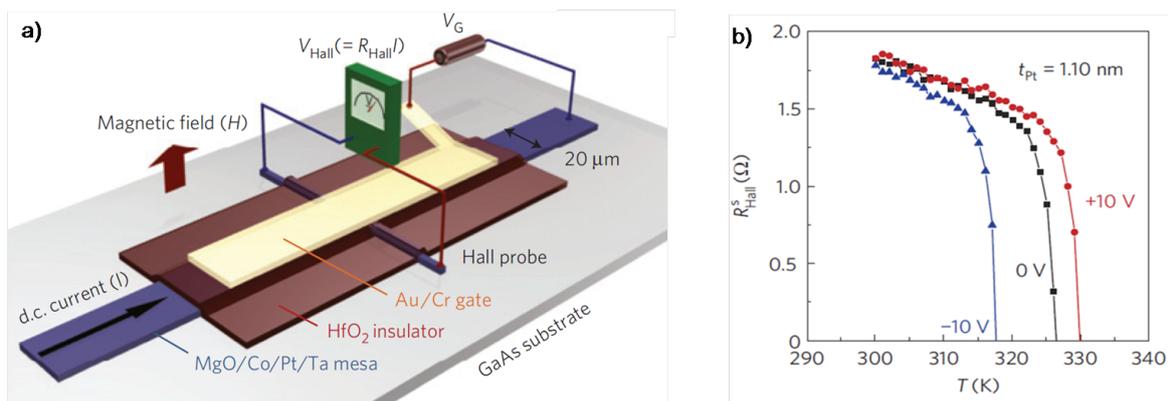


FIGURE 2.4: a) Système mesuré par Chiba et al. [44]. Mesures de cycles d'effet Hall (voir la description de ce type de mesure au chapitre 3).

b) Variation de la  $T_c$  du système sous l'application d'un gradient de tension de 20V, gouvernant la transition de type ferromagnétique/paramagnétique observée.

### 2.1.3.3 Modification de la $T_c$ et de $M_s$ - 2011

Dans cette optique, le travail de Chiba et al. [44] est à mentionner car il traite du contrôle par champ électrique des propriétés magnétiques d'un film ultra-mince de *Co* déposé par pulvérisation cathodique, à température ambiante. Leur structure se composait de : *GaAs*//*Ta*(3nm)/*Pt*(1, 04 - 1, 1nm)/*Co*(0, 4nm)/*MgO*. La couche de diélectrique ajoutée ensuite se trouvait être de l'oxyde d'hafnium,  $HfO_2$ , et une contre-électrode d'or était déposée sur le dessus de la structure (cf fig. 2.4 a)).

Ce type d'échantillon est extrêmement proche de ceux que j'ai étudiés au cours de ma thèse. En effet, la très faible épaisseur de *Co* utilisée mène à des effets de champs remarquables et pouvant piloter l'ordre magnétique. Chiba et al. ont réalisé une étude pour des couches dont la valeur de température de Curie  $T_c$  se trouvait être proche de l'ambiante. En appliquant un champ électrique sur ce type de système, ils ont été capables de piloter la valeur de la  $T_c$  de leur échantillon, et donc d'avoir accès à une transition de phase de type ferromagnétique/paramagnétique pour leur structure (cf fig. 2.4 b). Une variation d'environ 12K a été reportée pour une valeur de champ électrique proche de  $\pm 0,192V/nm$ , correspondant à une accumulation/déplétion de  $\pm 0,012e^-$  par atome de *Co* de surface.

Cette étude a soulevé un point important : des effets de taille finie sont aussi à prendre en compte pour des couches si minces. En effet, Chiba et al. ont remarqué que leurs observations ne concordent pas avec les prédictions théoriques concernant le sens de variation de cette température avec le champ électrique. En effet, il a été calculé que la  $T_c$  du *Co* est diminuée (augmentée) lorsque le nombre d'électrons à la surface augmente (diminue) [54]. Ceci est en désaccord avec les résultats expérimentaux de Chiba et al. Il est mentionné que cela peut être dû à un mixing entre les couches de *Co* et du *Pt* sous-jacent, qui peuvent induire un moment magnétique plus fort que ce qui est attendu. Il est aussi mentionné que la variation de la  $T_c$  pourrait être due dans ce cas à une variation générale du couplage magnétique au sein de la couche. Ceci est déduit en considérant les différents modèles d'orientation de spin. Il est décrit que grâce à l'exploitation de leurs mesures  $m(T)$ , Chiba et al. ont été capables de déduire une dimensionnalité 2D pour les spins de leur couche fine. Dans ce cas là, une accumulation d'électrons peut jouer un rôle important dans le couplage magnétique du système. Alors, les modifications de l'anisotropie induites

par l'application du champ électrique au sein du système peuvent aussi avoir un effet sur la valeur de la  $T_c$ .

#### 2.1.3.4 Contrôle du piégeage et de la nucléation des domaines - 2013

La modification de l'anisotropie et de la coercivité du système engendrent de nombreux autres effets. Nous pouvons citer dans ce paragraphe les résultats obtenus sur le contrôle par champ électrique du procédé de nucléation des parois de domaines au sein du système. Nous verrons que le champ électrique a un effet direct sur le piégeage de ces domaines.

En 2013, il a été démontré par Franken et al. [55] et par l'équipe avec qui j'ai fait ma thèse (Bernand-Mantel et al. [56]) que le champ électrique pouvait influencer sur le piégeage des parois de domaines grâce à l'apparition d'une marche dans le profil d'énergie. En effet, Franken et al. ont été capables de mesurer une variation linéaire entre le champ de dépiégeage d'une paroi de domaine et le champ électrique appliqué [55] (cf fig. 2.5 a). Basé sur les conclusions de Bernand-Mantel et al. [56], ils assimilent ce phénomène de piégeage à un saut dans le profil d'énergie du système sous l'application d'une tension (cf fig. 2.5 b). Ce saut étant lui-même induit par la variation soudaine de l'anisotropie du système sous l'application d'un champ électrique (cf haut de la fig. 2.5 b).

Afin d'extraire la valeur du saut en anisotropie, ils ont réalisé des mesures de champ de dépiégeage qui correspond au champ magnétique appliqué minimal permettant le mouvement de la paroi (cf fig. 2.5 c). Une de leurs précédentes études avait permis de lier ce champ de dépiégeage,  $H_{pin}$ , avec la variation de l'anisotropie du système. Il s'avère que cette relation est linéaire et s'exprime comme [55] :

$$H_{pin} = \frac{\Delta K}{2\mu_0 M_s} \cdot \frac{2\lambda}{\delta} \tanh\left(\frac{\delta}{2\lambda}\right), \quad (2.1)$$

avec  $\Delta K$  la variation de l'anisotropie ;  $\delta$ , la largeur de la marche d'anisotropie (cf fig. 2.5 b)<sup>5</sup>, et  $\lambda$  la largeur de la paroi du domaine. Ce profil linéaire est bien retrouvé dans leur cas (cf fig. 2.5 a), ce qui traduit un contrôle par champ électrique de l'anisotropie de leur système. L'aimantation  $M_s$  est inchangée pour cette étude.

Bernand-Mantel et al. [56] ont aussi mis en évidence ce contrôle du piégeage des parois au sein d'un système de  $Pt/Co/Al_2O_3$  semblable à celui qui a été utilisé au cours de ma thèse. Ils ont fait la différence entre la marche d'énergie,  $\Delta E_s$ , obtenue en modulant l'énergie d'anisotropie magnétique par l'application d'un champ électrique et la gamme d'énergie correspondant aux fluctuations dues aux défauts locaux,  $\Delta E_B$  (cf fig. 2.6 a). Le contrôle du piégeage est alors détectable si :  $\Delta E_s > \Delta E_B$ .

Au cours de leurs travaux, ils ont aussi mis en évidence le contrôle par champ électrique de la nucléation des domaines. Le système utilisé présente un gradient d'épaisseur de l'alumine déposée sur le dessus ; la structure est donc soumise à un gradient d'anisotropie. Nous verrons par la suite une description plus complète de ce type de tricouche (cf chapitre 4 et 5). Leurs images ont été obtenues à l'aide d'un microscope à effet Kerr (voir chapitre 3 pour la description). Elles ont été enregistrées 200ms après l'application d'un faible champ magnétique perpendiculaire de 1mT et sous l'application de différentes tensions, après que la couche ait été saturée dans la di-

5. qui est fonction, entre autres, de l'épaisseur et de la permittivité relative du diélectrique utilisé

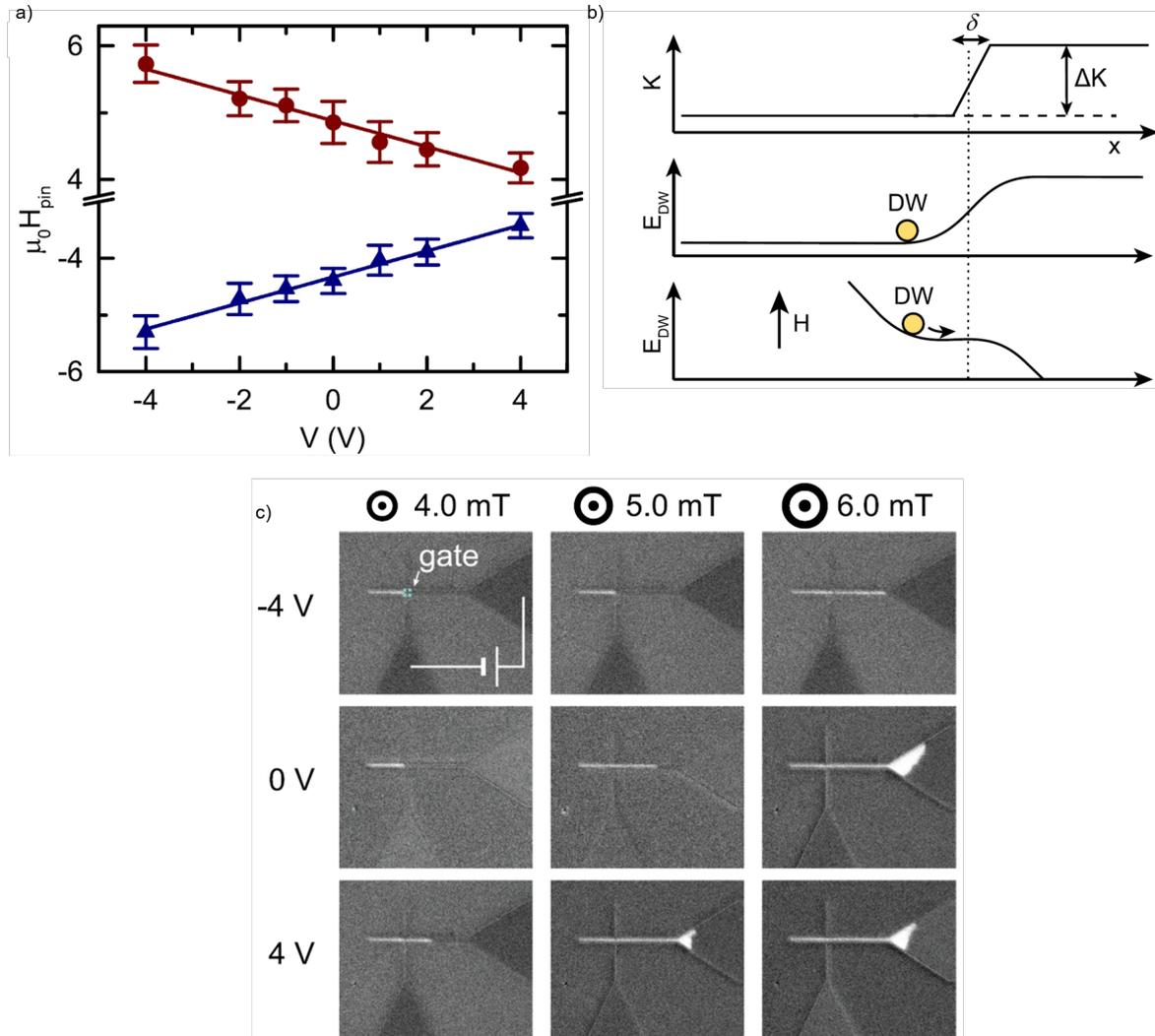


FIGURE 2.5: a) Champ de dépiéage ( $mT$ ) de la paroi en fonction de la tension appliquée sur le système ( $V$ ) pour les deux orientations de domaines.

b) Marche (saut) d'anisotropie,  $\Delta K$  à la frontière avec l'électrode supérieure. Ce qui induit une discontinuité dans le profil énergétique, et donc une barrière d'énergie à franchir pour la paroi. Barrière qui peut être modulée avec l'application d'un champ magnétique suffisant : le champ de dépiéage.

c) Images réalisées en microscopie Kerr pour différents champs magnétiques et différentes tensions appliqués. Le sens de connexion de l'électrode supérieure est précisé sur l'image en haut à gauche et la position de l'électrode (gate) est repérée [55].

rection opposée (noire) (cf fig. 2.6 b)).

On remarque facilement que la nucléation est favorisée<sup>6</sup> dans la zone de plus faible anisotropie comme le montre l'image à 0V (cf fig. 2.6 b, bas de l'image). Cette nucléation est très influencée par les variations d'anisotropie, et son taux peut être décrit exponentiellement par le modèle de probabilité de Néel-Brown :  $P(t) = 1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right)$ , où  $\tau$  représente le temps moyen de nucléation et qui correspond à  $\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_N}{k_B T}\right)$ .  $E_N$  est la barrière d'énergie à franchir pour amorcer la nucléation, elle est dépendante de l'anisotropie magnétique du système et du volume de nucléation.  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $T$  la température.  $\tau_0$  est défini comme le taux d'essai et est une constante propre au système ( $10^{-9} - 10^{-10} s$ <sup>7</sup>).

Cette relation est cohérente avec les observations à 0V, qui traduisaient d'une forte densité de nucléation, donc d'une forte probabilité de retournement, pour les zones de plus faible anisotropie.

Les auteurs ont montré que cette variation spatiale d'anisotropie perpendiculaire magnétique, induisant une variation de la densité de nucléation des domaines, se décalait avec l'application d'un champ électrique sur leur structure (cf fig. 2.6 b). En effet, un champ électrique négatif favorisait la nucléation de domaines sous l'électrode, alors qu'un champ positif avait l'effet inverse. Une équivalence position-tension a même été extraite (cf encart en fig. 2.6). Ils ont pour cela défini une quantité  $\delta d$ , correspondante au décalage du front de la zone de nucléation pour rapport à cette position à 0V. Cette équivalence avec un déplacement le long de l'échantillon confirme bien ce pilotage de l'anisotropie magnétique perpendiculaire avec l'application d'un champ électrique.

Nous allons maintenant voir comment ce contrôle par champ électrique du processus de piégeage des parois, par l'intermédiaire du contrôle de l'anisotropie magnétique, a pu influencer le régime de propagation de ces parois de domaines.

### 2.1.3.5 Modification de la vitesse de propagation des domaines - 2012

Le régime de reptation (creep) est défini comme un régime de propagation à faibles champs magnétiques appliqués. Pour ce type de régime, le déplacement des parois se fait grâce à l'agitation thermique et ce de manière décomposée (se déplaçant d'un défaut à un autre). Une paroi se déplacera de défaut en défaut le long de l'échantillon. Ces défauts se définissant comme des minimums locaux dans le paysage énergétique du système. La vitesse de la paroi,  $v$ , peut alors s'écrire<sup>8</sup> :

$$v = v_0 \cdot \exp\left[-\left(\frac{U_c}{k_B T}\right) \cdot \left(\frac{H_{dep}}{H}\right)^{1/4}\right], \quad (2.2)$$

avec  $U_c$  représentant la barrière d'énergie due au piégeage,  $H_{dep}$  le champ de dépiégeage de la paroi,  $H$  le champ magnétique perpendiculaire appliqué et  $v_0$  est un pré-facteur propre au système mesuré (voir annexe F pour plus de précisions).

6. domaines en blanc

7. Ce taux est calculé en se basant sur l'équation de précession de Landau-Lifshitz-Gilbert (*LLG*), où la fréquence de précession serait dans la gamme  $0, 1 - 1GHz$ .

8. Cette expression sera rappelée en annexe F

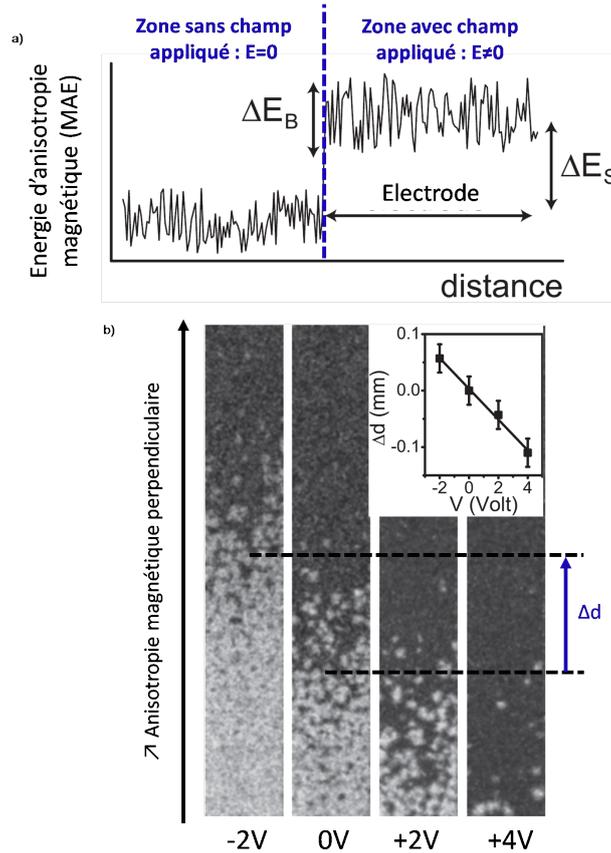


FIGURE 2.6: a) Profil d'énergie d'anisotropie magnétique sous l'électrode (correspondant aux images Kerr), ainsi qu'en dehors de l'électrode d'ITO. La marche d'énergie induite par l'application du champ électrique  $\Delta E_s$  est représentée, ainsi que la gamme d'énergie correspondante aux fluctuations  $\Delta E_B$  liées aux défauts.

b) Images réalisées en microscopie Kerr témoignant du contrôle de la densité de nucléation des parois de domaines lors de l'application d'un champ électrique. Le gradient d'anisotropie existant au sein de l'échantillon est précisé [56].

Deux études réalisées en parallèle en 2012 ont mis en évidence le contrôle par champ électrique de la vitesse de propagation des parois de domaines magnétiques [37, 57]. Schellekens et al. [37] ont démontré un contrôle de cette vitesse de propagation au sein de deux types de systèmes :  $Pt/Co/AlO_x$  et  $Pt/Co_{68}B_{32}/TaO_x$  à l'aide de méthode d'imagerie en Kerr polaire (cf fig. 2.7 a). Leur étude a été réalisée en régime de reptation.

Les auteurs ont été capables de déterminer une variation de  $v$  d'un ordre de grandeur dans le cas du système  $Pt/CoB/TaO_x$  ( $0,4 - 4 \mu m/s$ )<sup>9</sup> (cf fig. 2.7 c). Ils ont déduit une variation raisonnable de la valeur de l'énergie d'anisotropie magnétique chiffrée à  $28 fJ/(V.m)$  pour  $Pt/CoB/TaO_x$ <sup>10</sup> et on considéré que la valeur de cette énergie était linéaire avec la tension appliquée. Basés sur cette approximation, ils ont démontré que la valeur de la barrière d'énergie  $U_c$  était elle aussi linéaire avec la tension appliquée dans le cas d'un régime de reptation<sup>11</sup>. Notons que dans leur configuration, une tension positive représente une déplétion d'électrons à l'interface métal oxyde, venant diminuer la coercivité et l'anisotropie, ce qui induit une vitesse des parois

9. La vitesse a été multipliée par 4 dans le cas de l'autre système (cf fig. 2.7 b)

10.  $14 fJ/(V.m)$  pour  $Pt/Co/AlO_x$

11. cf Supplementary de [37]

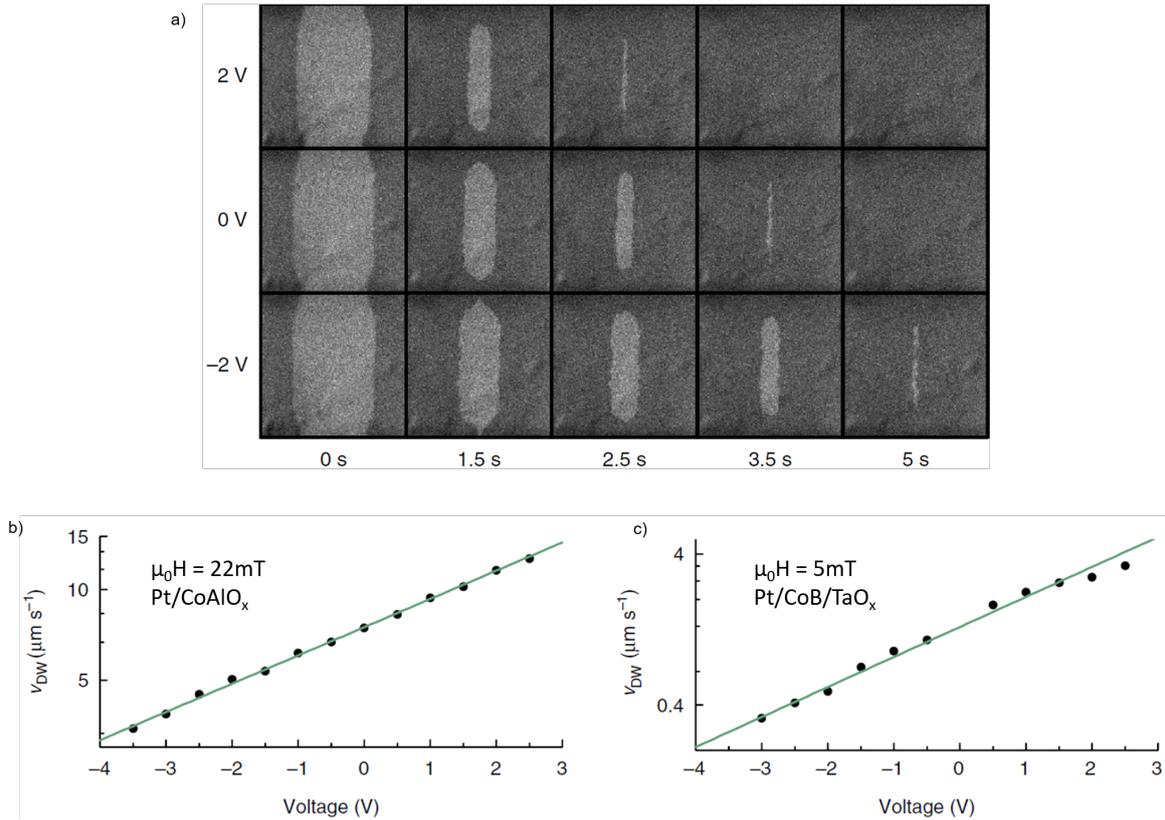


FIGURE 2.7: a) Images réalisées en microscopie à effet Kerr, à intervalles de temps réguliers, témoignant de l'effet direct de l'application d'une tension sur la propagation des parois de domaines magnétiques. Images d'environ  $180\mu\text{m}$  de large.

b) Variation de la vitesse de propagation des parois en fonction de la tension appliquée sur le système pour la structure  $\text{Pt/Co/AlO}_x$ . Le champ magnétique appliqué pour les mesures de propagation est alors de  $22\text{mT}$ .

c) De même pour le système  $\text{Pt/CoB/TaO}_x$  et pour un champ magnétique égal à  $5\text{mT}$ .

plus importante. Cette configuration est donc inversée par rapport à ce qui a été présenté dans les paragraphes précédents.

Les auteurs insistent sur les variations obtenues pour l'énergie d'anisotropie magnétique mais ils mentionnent dans leurs travaux supplémentaires, qu'une variation de l'aimantation est aussi envisageable dans ce type de mesure, et qu'elle pourrait être la variation dominante dans cette expérience de propagation pilotée par un champ électrique : "The derivation shows that a voltage-induced change in  $PMA$ , be it through a change of the surface anisotropy or the saturation magnetization, should be at the origin of the demonstrated sensitivity of  $v_{DW}$  to the electric field". Ils mentionnent toutefois que cela se répercuterait de la même manière qu'une variation d'anisotropie dans les observations finales. En effet, la plus forte contribution intervenant dans ce contrôle de la vitesse est donnée par la variation d'anisotropie, qui peut être amenée par la variation de son terme d'anisotropie de surface  $K_s$  ou bien par l'évolution de son terme démagnétisant  $K_d = 1/2\mu_0 M_s^2$  (induit par la modification de  $M_s$ ) (cf Supplementary de [37]).

Cette étude a constitué la première observation expérimentale du contrôle de la vitesse de propagation des domaines par champ électrique et se trouve être très prometteuse en vue d'applications de type mémoires, dans lesquelles le transport de l'information pourrait être réalisé par

l'application de tensions extérieures. Cette variation d'environ un ordre de grandeur de la vitesse a été vérifiée la même année par un autre groupe [57], ainsi qu'à l'institut Néel, dans le groupe où j'ai fait ma thèse.

## 2.1.4 Renversement assisté par champ électrique : mises en évidence expérimentales

Le fait de pouvoir contrôler de manière locale les différents paramètres magnétiques tels que la coercivité et l'anisotropie a permis d'envisager de nouveaux mécanismes menant au renversement de l'aimantation et pouvant être utilisés dans des systèmes de type *MTJs*. Dans cette optique, le premier prototype d'une *MTJ* contrôlée par champ électrique a été réalisé par Nozaki et al. [58].

Nous avons déjà vu en section 2.1.3.4 que ce renversement peut être gouverné par le pilotage en champ électrique du procédé de nucléation des domaines. En 2012, deux études ont permis de mettre en évidence la potentialité d'un retournement de l'aimantation d'un système, assisté par l'application d'un champ électrique.

Le premier phénomène de renversement a été démontré par Shiota et al. [59] dans des *MTJs* de type : *CoFe/MgO/CoFe* d'axe de facile aimantation parallèle aux couches. Ils ont réalisé ce renversement en utilisant une précession cohérente de l'aimantation induite par l'application de pulses très courts (*ns*) de champ électrique en présence d'un champ magnétique constant et tilté par rapport à la couche. Ce type de renversement peut être qualifié de renversement dynamique de l'aimantation et se base sur une variation temporelle de la direction facile de l'anisotropie.

Wang et al. [39] ont utilisé des jonctions à anisotropie perpendiculaire, de type : *CoFeB/MgO/CoFeB*. Ils ont démontré un renversement réversible en se focalisant sur la variation de la coercivité de leur système, associée à un couple de transfert de spin. Cela a donné accès à un processus de renversement pour des densités de courant employées jusqu'à 2 ordres de grandeur plus faible que ce qui est généralement utilisé dans les *MTJs* [60]. Ce type de renversement peut être qualifié de renversement statique de l'aimantation.

### 2.1.4.1 Principe général du renversement assisté par un champ électrique

Le principe sur lequel nous pourrions nous baser pour réaliser un renversement de l'aimantation assisté par champ électrique a été présenté en 2012 par Tsymbal [60] et est reporté en figure 2.8. La variation de l'anisotropie perpendiculaire, donc de la coercivité démontrée auparavant permet d'élargir ou de réduire les cycles d'hystérésis. Dans cet exemple, lorsque le champ électrique appliqué est nul, l'aimantation pointe vers le haut (cf fig. 2.8 a. En appliquant un champ électrique positif,  $H_c$  est diminué, et il est alors possible de retourner l'aimantation à l'aide du faible champ,  $H_{bias}$ , appliqué perpendiculairement à la structure.

Appliquer ensuite un champ électrique négatif, ou bien revenir à un champ nul, permet à nouveau d'élargir le cycle et de garder l'aimantation en direction basse. Le champ magnétique pourrait être appliqué constamment ou bien par pulses réguliers lorsque le processus de renversement le requiert.

Nous retrouvons la description de ce principe de renversement de l'aimantation en couplant un champ électrique et un faible champ magnétique, pour des jonctions à anisotropie perpendiculaire et planaire, dans les travaux de Amiri et al. [61]. Nous allons maintenant décrire avec plus de précisions les travaux de Shiota et al. [59] et résumerons les principes utilisés par Wang et al. [39].

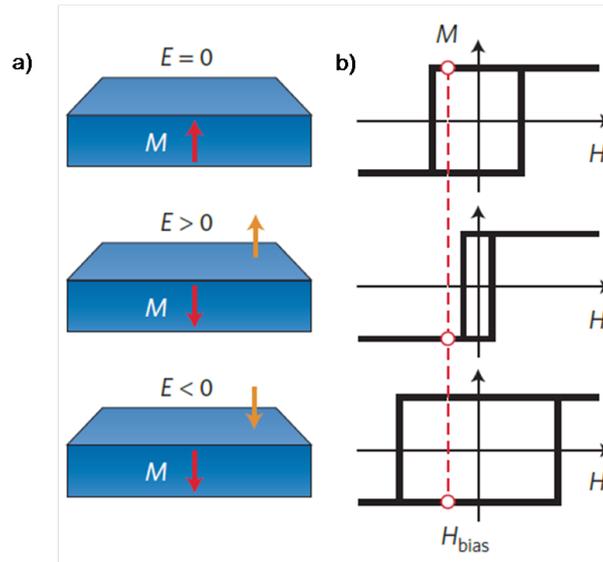


FIGURE 2.8: a) Principe du modèle de renversement de l'aimantation assisté par l'application d'un champ électrique et d'un champ magnétique. Les flèches rouges représentent la direction d'aimantation et les flèches oranges celles du champ électrique appliqué. b) Conséquence de l'application d'un champ électrique sur les cycles d'hystérésis du matériau [60].

#### 2.1.4.2 Première mise en évidence : renversement dynamique de l'aimantation - 2012

Le contrôle de l'anisotropie magnétique avec le champ électrique permet de modifier les axes de facile orientation<sup>12</sup>. Comme mentionné en introduction, Shiota et al. [59] ont travaillé sur des jonctions à anisotropie planaire dont le schéma est donné en figure 2.9 a). Un champ magnétique extérieur appliqué quasiment perpendiculairement à la structure permet d'incliner l'aimantation de la couche libre à  $45^\circ$  par rapport à la surface de la couche. L'application d'un pulse de champ électrique négatif sur cette structure<sup>13</sup> permet de renforcer l'anisotropie perpendiculaire, initiant un mouvement de précession de l'aimantation autour de l'axe du champ magnétique appliqué,  $H_{ext}$ . A l'inverse, l'application d'un pulse de champ électrique positif vient réduire (supprimer) l'anisotropie magnétique perpendiculaire et aucun mouvement de précession de l'aimantation n'est alors amorcé.

En jouant sur la durée des pulses appliqués, Shiota et al. ont été capables de stopper la précession de l'aimantation dans l'une des deux directions de l'aimantation possible ( $\pm 45^\circ$  par rapport à la normale aux surfaces). Pour des durées d'impulsion égales à un nombre impair de demi-période de précession, l'état final de l'aimantation était alors opposé à l'état initial (cf fig. 2.9 b) i., iii. et v.). A l'inverse, des durées de pulses correspondant à des multiples de la période de précession faisaient correspondre l'état final d'aimantation avec l'état initial.

Cet effet de renversement en fonction de la durée des impulsions a été mesuré en enregistrant l'état de résistance de la structure, variant d'un état de haute résistance lorsque l'état final de l'aimantation dans la couche libre se trouvait opposé à la direction de l'aimantation du  $Fe$  de la couche fixe (état anti-parallèle  $AP$ ) et inversement (état parallèle  $P$ ) (cf fig. 2.9 c). Cette

12. Voir section 2.1.3.2

13. La tension positive est définie comme l'application d'une tension positive sur l'électrode du haut de la structure (elle-même en contact avec la couche fixe de la jonction, cf fig. 2.9 a)

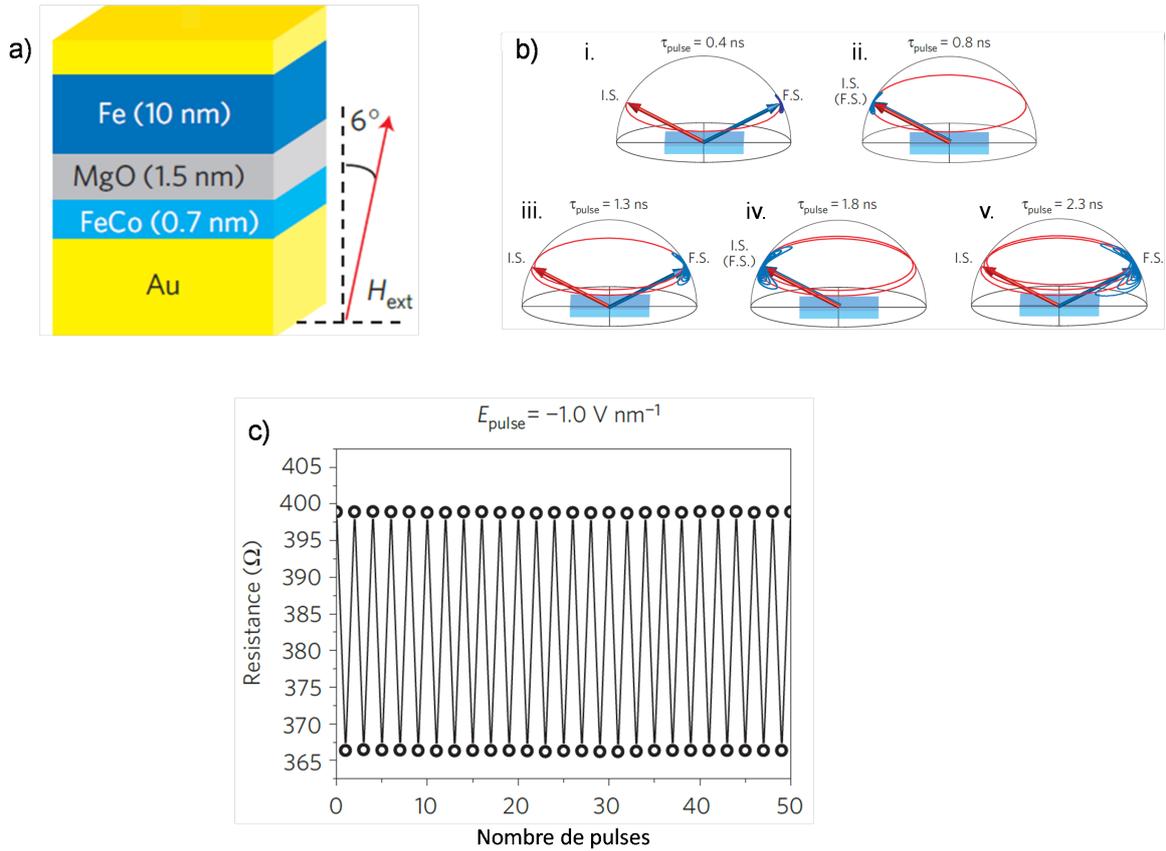


FIGURE 2.9: a) Représentation schématique du système étudié par Shiota et al. [59]. La direction tiltée du champ magnétique appliqué  $y$  est précisée. b) Précession induite du  $CoFe$  pour des durées de pulses particulières et correspondantes à une demie période de rotation (*i*, *iii* et *v*), ou à une période de rotation complète (*ii* et *iv*). IS représente l'état initial de l'aimantation et FS l'état final après avoir stoppé la précession. c) État de résistance du système en fonction du nombre d'impulsions de  $0, 55$  ns chacune.

première mise en évidence d'un effet de retournement de l'aimantation assisté par l'application d'un champ électrique démontre une potentialité pour des applications de type mémoires, dont les temps d'écriture pourraient être réduits à l'échelle de la nanoseconde.

### 2.1.4.3 Première mise en évidence dans un système à anisotropie perpendiculaire : renversement statique de l'aimantation - 2012

Wang et al. [39] ont travaillé sur des jonctions à anisotropie perpendiculaire décrites en introduction. Le principe du renversement qu'ils ont utilisé se base sur la description donnée en section 2.1.4.1. En jouant sur la polarité du champ électrique appliqué, ainsi que sur le fait que les effets obtenus sont inverses pour les électrodes<sup>14</sup>, ils ont été capables de démontrer un effet de renversement de l'aimantation de manière statique sous faible champ magnétique appliqué perpendiculairement à la structure (cf fig. 2.10). A nouveau, ce renversement est déduit par l'enregistrement de la valeur de la résistance du système, variant d'un état de forte résistance ( $AP$ ) à un état de faible résistance ( $P$ ).

14. L'une subissant une accumulation de charges, venant réduire sa coercivité, et l'autre subissant une déplétion de charges

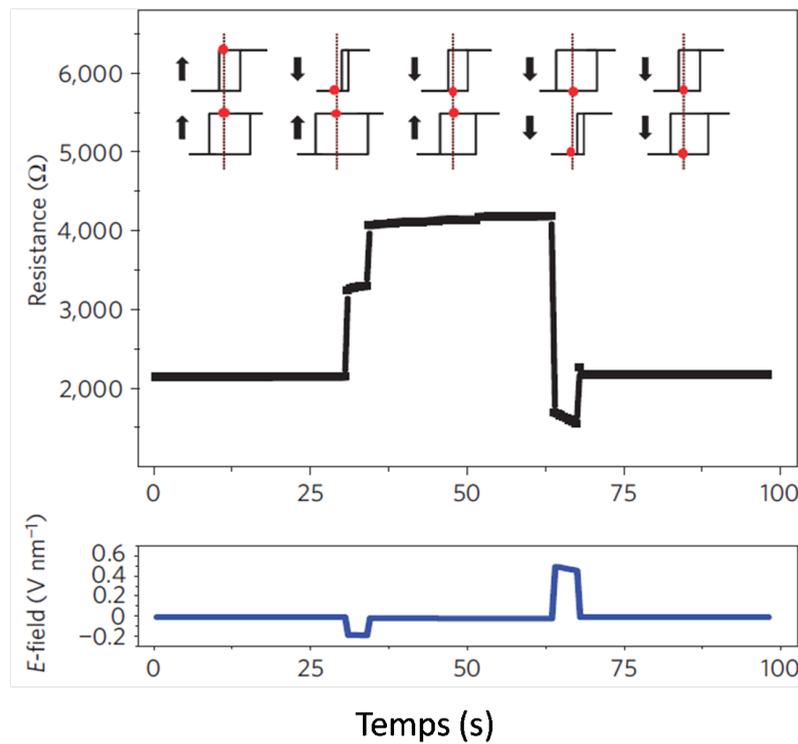


FIGURE 2.10: État de résistance de la jonction mesurée par Wang et al. [39], pour un champ magnétique appliqué faible ( $-1, 5mT$ ) et représentation des temps d'application du champ électrique sur la structure. L'encart supérieur donne une représentation schématique de la configuration magnétique des deux couches de *CoFeB* de la jonction. Les flèches représentant la direction de l'aimantation et la ligne en pointillés le champ magnétique extérieur appliqué.

Cependant, ce principe de renversement ne permet pas le retour à l'état initial des orientations de l'aimantation. En effet après ce cycle en champ électrique représenté en figure 2.10, l'état initial haut-haut de l'aimantation est alors un état bas-bas. Un retour à cet état de référence nécessiterait alors l'inversement du sens du champ magnétique appliqué, ce qui est difficile à intégrer au sein d'un dispositif. Pour pallier à cela, Wang et al. [39], ont couplé ce renversement avec le passage d'un courant polarisé en spin, ceci pour une valeur de champ magnétique extérieur plus importante, fixant ainsi la direction de l'aimantation de la couche fixe, malgré ses modulations d'anisotropie avec le champ électrique. La densité de courant suffisante pour amorcer le renversement de l'aimantation de la couche libre étant directement proportionnelle à l'anisotropie magnétique de la couche, le renversement de l'aimantation a été atteint pour des valeurs de courants bien plus faibles que dans les dispositifs sans champ électrique. En effet, cette variation d'anisotropie est pilotée par l'application du champ électrique et vient réduire les courants d'écriture nécessaires.

Nous avons donc vu dans cette section les différentes observations expérimentales des effets de champ électrique sur les propriétés magnétiques des matériaux, ainsi que quelques prototypes utilisant ces variations qui permettent d'envisager des applications de type mémoires faiblement coûteuse en énergie. Nous allons maintenant décrire les explications théoriques quant à l'origine physique de ce phénomène. Nous verrons aussi comment la force de ces effets est classifiée actuellement et quelles sont les avancées visées.

## 2.2 Effet de champ électrique : un effet de surface

L'étude des effets de champ électrique sur les propriétés d'un matériau magnétique concerne les couches ultra-minces. Un effet d'écrantage existe de la part des électrons de conduction lors de l'application de la tension, au sein du métal. Pour les métaux, cet effet s'exprime généralement sur une monocouche [62], et nous pouvons donc considérer que seulement l'interface est affectée [62]. Des couches très minces de matériau ferromagnétique sont donc utilisées pour ce type d'étude dans le but de maximiser les effets observés. L'étude présentée en section 2.1.3.1 vient confirmer cette considération. En effet Weisheit et al. [52] ont remarqué que de forts effets étaient obtenus pour des couches ferromagnétiques de  $2nm$ , alors qu'ils étaient quasiment inexistantes pour des couches légèrement plus épaisses ( $4nm$ ). *Nous pouvons prendre l'exemple de notre structure (qui sera décrite plus en détails au chapitre 4) pour venir vérifier du caractère purement surfacique de l'effet de champ électrique et de cette faible longueur de pénétration du champ électrique au sein du métal ferromagnétique (fort écrantage). En effet, en considérant une longueur de pénétration typique de l'ordre de  $1\text{\AA}$  pour le cobalt, cette longueur représente une fraction de 10 à 20% du film que l'on étudie, et donc il sera encore juste de considérer des effets de surface.*

Il est important de noter que cet effet d'écrantage est à l'origine de l'effet magnétoélectrique défini par Duan et al. [62] en 2008. En effet, pour les matériaux ferromagnétiques, la charge échantée est dépendante de l'orientation de spin [62]. Il y a donc une accumulation différente des spins up et down à l'interface, ce qui contribue à l'existence d'un moment magnétique de surface induit,  $\Delta M$ , qui s'exprime linéairement avec la valeur du champ électrique appliqué :  $\mu_0 \Delta M = \alpha_S E$ , avec  $E$  le champ électrique et  $\alpha_S$  le coefficient magnétoélectrique. Généralement, ce coefficient magnétoélectrique est faible pour les métaux, et donc le moment magnétique induit sous l'application d'un champ électrique est négligeable comparé à l'effet magnétoélectrique observé pour l'anisotropie magnétique. Ce coefficient peut être amplifié pour de fortes valeurs de constantes diélectriques. La quantité de charges échantées étant très dépendante du

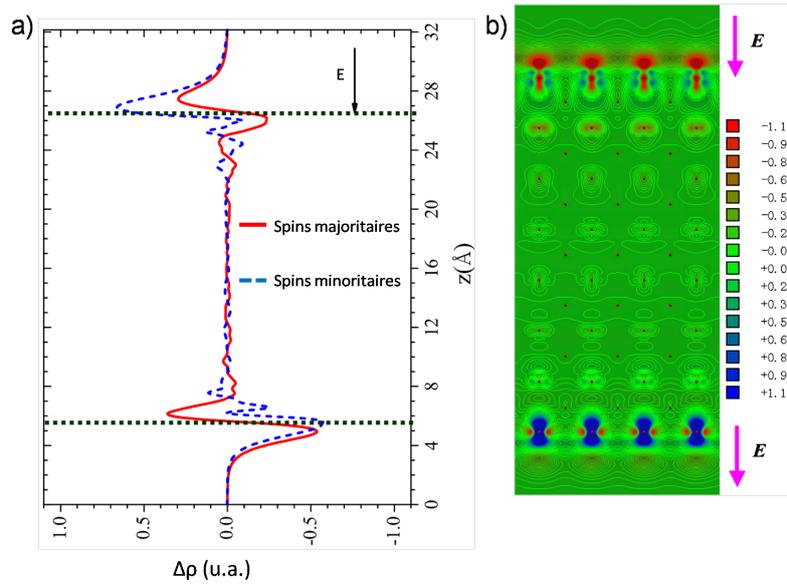


FIGURE 2.11: a) Densité de charges induite aux interfaces de la couche de  $Fe$  (dont l'épaisseur est le long de la direction  $z$ ), pour un champ électrique appliqué de  $10V/nm$  [62]. b) Moments de spins de polarités opposées induits aux interfaces d'une couche de  $Fe$ , d'épaisseur représentant 15 couches atomiques, sous l'application d'un champ électrique de  $10V/nm$ .

diélectrique utilisé.

Nous représentons en figure 2.11 a la densité de charges électroniques calculée par Duan et al. [62] en fonction de la position le long de la structure, pour un film de fer de  $2,1nm$  d'épaisseur dans du vide<sup>15</sup>. La figure 2.11 b représente quant à elle la densité de spin induite sur cette couche de fer sous l'application d'un champ électrique. Il est facilement observable que la localisation de l'effet se fait bien aux interfaces de la couche avec le vide. Les mêmes observations ont été faites dans le cas d'une interface de type  $Fe/MgO$  [40].

Au cours de ma thèse, une étude a été réalisée sur des systèmes de type tricouches décrits au chapitre 1 et sur lesquels ont été concentré mes travaux durant ces trois ans (cf chapitre 4). Il a été démontré que, selon le degré d'oxydation de l'interface ferromagnétique/oxyde ( $Fe/MgO$  dans cette étude), les forts effets de champ électrique n'étaient pas forcément localisés sur la première monocouche de l'interface [63]. Cela n'est pas dû au fait que la première couche ressent moins les effets de champ, cependant ces effets se trouvent être forts pour toutes les orbitales atomiques  $3d$ , ce qui mène à une compensation du signe de leur effet et donc à une contribution nette du champ électrique quasiment nulle (cf fig. 2) a) en référence [63]). La deuxième couche est alors celle qui contribue le plus aux modifications des paramètres magnétiques. Cette observation a été faite dans le cas d'une oxydation optimale de l'interface et l'effet inverse était remarqué pour une sur-oxydation de l'interface  $Fe/MgO$ . Nous pouvons donc conclure que ces effets de champ électrique sont à considérer dans le cas de couches ultra-minces et proches des interfaces, mais que la qualité des interfaces peut amener à des effets plus marqués en profondeur qu'en surface. Dans tous les cas, ces observations restent à l'échelle de quelques monocouches.

15. La couche de fer étant localisée entre  $5,5\text{Å}$  et  $26,5\text{Å}$  sur la figure 2.11 a

## 2.3 Effet de champ électrique : origine

Nous verrons dans cette section les deux grandes catégories d'effets qui ont été décrites pour classer les différentes variations des paramètres magnétiques observées sous l'application d'un champ électrique. Nous décrirons les systèmes de type condensateurs plans parallèles que l'on est susceptible d'obtenir et pour lesquels les effets sont assimilés à une accumulation/déplétion de charges électriques aux interfaces du système. Nous mentionnerons aussi les effets qui ont été observés pour d'autres systèmes, qui mettent en jeu des migrations d'ions au sein du système.

### 2.3.1 Accumulation de charges : un effet de capacité

Nous avons vu, grâce au travail de Duan et al. [62] présenté précédemment, que l'application d'un champ électrique à la surface d'un matériau ferromagnétique contribuait à une variation de deux paramètres principaux que sont le moment magnétique  $m$  et l'anisotropie magnétocristalline. Duan et al. ont prédit une variation assez linéaire de ces deux paramètres en fonction du champ électrique appliqué. Nous verrons dans ce paragraphe comment les études suivantes ont interprété l'origine de ces effets de champs, et les différentes théories associées.

#### 2.3.1.1 Modification du remplissage des orbitales atomiques - 2009-2010

Les travaux théoriques de Tsujikawa et al. [64] et de Niranjana et al. [40], ainsi que les observations et déductions expérimentales de Maruyama et al. [38]<sup>16</sup> ont clarifié le travail de Duan et al. [62] en assimilant la variation du moment orbital (calculée par Niranjana et al.), et donc de l'anisotropie magnétocristalline, à une modification de l'occupation relative des orbitales  $3d$  des atomes de  $Fe$ . Ces travaux se sont basés sur ceux de Kyuno et al. [65] qui avaient calculé qu'une modification dans le remplissage des bandes  $3d$ , dans un système de type  $Au/Fe(001)$ , avait un effet sur l'anisotropie perpendiculaire de ce système.

Dans le cas d'interfaces, la symétrie du système est brisée et le couplage spin-orbite joue un rôle très important dans l'expression d'un terme d'anisotropie perpendiculaire à la couche. Dans le cas d'une interface de type métal ferromagnétique/oxyde (comme étudiée par Maruyama et al. [38] et Niranjana et al. [40]), le couplage spin-orbite est faible, ce qui favorise une hybridation entre les orbitales de plus basse énergie<sup>17</sup>, ainsi qu'une hybridation entre les orbitales  $3d$  du métal et  $2p$  de l'oxyde [4]. A l'inverse, dans le cas d'une interface de type métal lourd/métal ferromagnétique (comme étudiée par Tsujikawa et al. [64]), le fort couplage spin-orbite aura pour effet d'élargir le gap d'énergie présent entre les orbitales des états parallèles et celles des états perpendiculaires [4]. Une anisotropie perpendiculaire magnétique peut alors être induite plus facilement.

A cause de ce couplage spin-orbite, les orbitales  $3d$  de symétries différentes vont contribuer différemment à l'anisotropie magnétocristalline<sup>18</sup>, et plus particulièrement à l'anisotropie de surface pilotant l'anisotropie globale dans le cas des couches minces. Ces termes d'anisotropie sont donc très sensibles au remplissage électronique de ces différentes orbitales  $3d$ . Le fait de modifier leur occupation peut donc affecter l'anisotropie magnétique.

L'application d'un champ électrique sur une interface de type métal ferromagnétique/oxyde (comme l'ont étudié Maruyama et al. [38]) se traduit par une accumulation/déplétion de charges

---

16. Dont les résultats sont présentés en section 2.1.3.2

17. Orbitales perpendiculaires  $d_{xz}$ ,  $d_{yz}$  et  $d_{z^2}$

18. La densité d'états dépend du type d'orbitale (cf fig. 5 et 6 de la référence [65])

électroniques à cette interface et modifie donc la densité d'électrons pour chaque atome de ferromagnétique en surface. Ceci induit une modification du remplissage des bandes  $3d$ , ce qui peut être imaginé comme équivalent à un décalage du niveau de Fermi [48] (cf fig. 2.12).

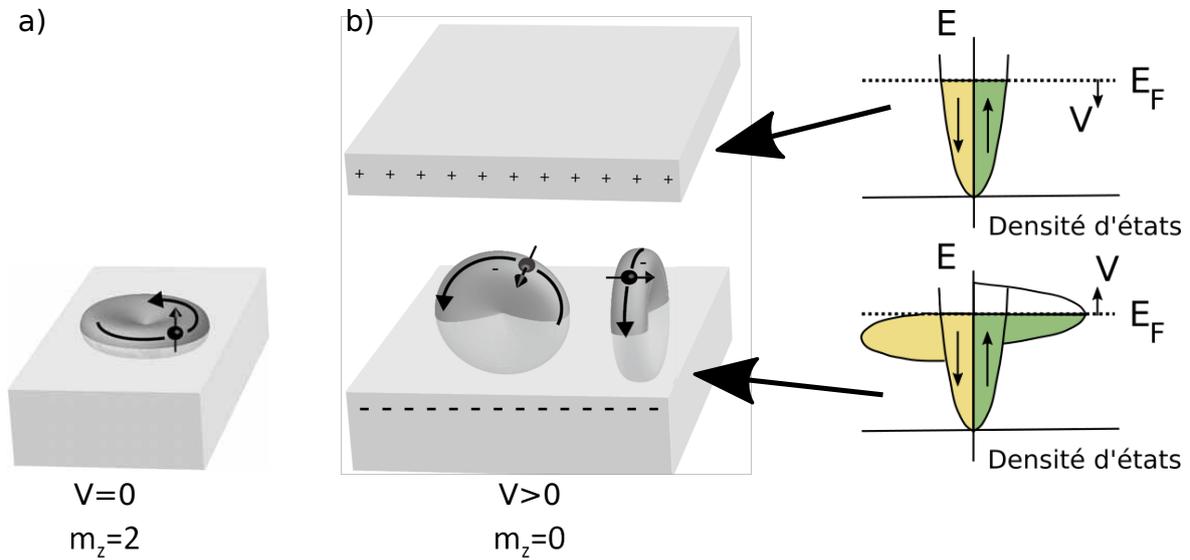


FIGURE 2.12: a) Représentation d'orbitales atomiques de type planaire ( $d_{xy}$  et  $d_{x^2-y^2}$ ), présentant une basse symétrie, et qui sont celles préférées à tension nulle et de celles de type perpendiculaire qui sont celles préférées lors de l'application d'une tension négative sur la contre-électrode (cf fig. 2.13 a).

b) Représentation des orbitales de type perpendiculaire, allongées le long du diélectrique et qui sont celles préférées lors de l'application d'une tension positive sur la contre électrode. [Ces figures sont reportées de la présentation de Y. Suzuki donnée à Skymag 2017].

c) L'application d'une tension sur la contre-électrode change la densité d'électrons remplissant les orbitales et ceci est équivalent à un décalage du niveau de Fermi, qui est représenté pour le métal de la contre électrode et pour le métal ferromagnétique. Adaptée de [48].

Dans l'étude de Maruyama et al. [38], l'application d'une tension négative sur l'électrode supérieure du système vient augmenter l'énergie des orbitales hybridées entre les orbitales  $3d$  du  $Fe$  et  $2p$  de l'oxyde<sup>19</sup> ( $d_{3z^2-r^2}$ ), et donc réduire le nombre d'électrons présents dans ces orbitales (l'effet inverse avec l'application d'une tension positive sur l'électrode supérieure est donnée en figure 2.12 a et b). Une redistribution de ces électrons est alors dirigée vers les orbitales libres<sup>20</sup> de type  $d_{x^2-y^2}$  (cf fig. 2.13 a), qui possédaient jusqu'alors une énergie plus importante [4]. Le moment magnétique orbitalaire  $m_z$  variant alors d'une valeur nulle à une valeur de 2. Une variation des propriétés magnétiques, et donc de l'anisotropie de surface de la couche de  $Fe$  est alors induite.

Une déplétion d'électrons dans les orbitales de type perpendiculaire de basse énergie se traduit par une augmentation de l'énergie d'anisotropie magnétique (donc par une augmentation de la  $PMA$ ). L'application de cette tension négative a donc augmenté l'anisotropie magnétique perpendiculaire du système comme cela l'est représenté en figure 2.13 b. De plus, Kyuno et al. [65] avaient conclu qu'une forte densité de moments magnétiques orbitaires  $m_z = 2$  pouvait être à

19. Et allongées perpendiculairement à la couche de ferromagnétique

20. Allongées le long de la surface

l'origine d'une anisotropie magnétique perpendiculaire (cf représentation en fig. 2.12 a).

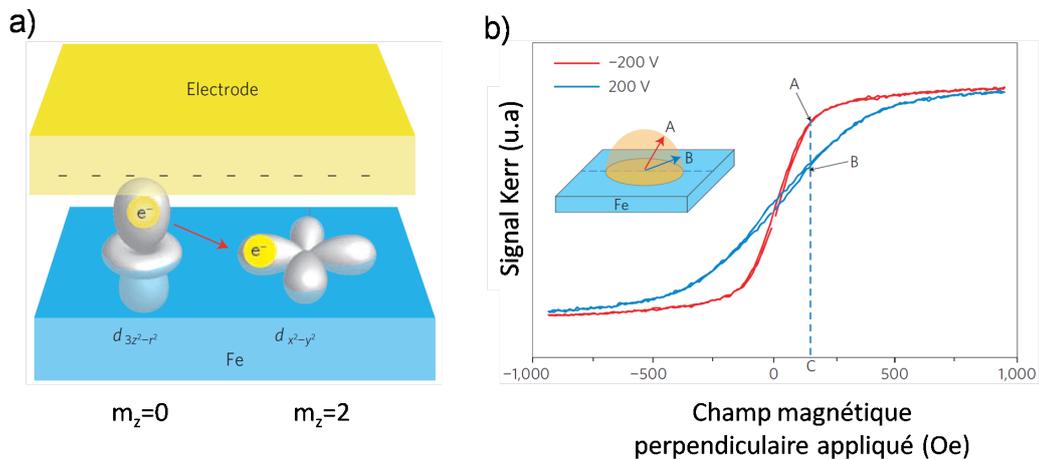


FIGURE 2.13: a) Schéma de la redistribution (flèche rouge) des électrons dans les différentes orbitales atomiques  $3d$  du fer pour le système étudiée en référence [38].  
 b) Et cycles d'hystérésis associés témoignant d'une anisotropie perpendiculaire plus importante sous l'application d'une tension négative ( $-200V$ ). Est donné en encart la direction de l'aimantation possible pour ces deux cycles.

Au cours de leur étude (par *DFT*), Niranjana et al. [40] ont aussi montré que la force de l'effet sur la variation d'anisotropie magnétique est très dépendante du diélectrique utilisé au contact du métal ferromagnétique. En effet, ils ont déduit une variation de l'énergie d'anisotropie magnétique de  $100fJ/(V.m)$  pour une interface de *Fe/MgO*, ce qui est 5 fois plus important que ce qu'avaient déduit Duan et al. [62] pour une interface de type *Fe/vide*.

### 2.3.1.2 Modification de la structure de bandes (2009)

De leur côté, Nakamura et al. [66] ont proposé une alternative à l'explication de l'origine physique de la modification de l'anisotropie magnétique par l'application d'un champ électrique. Ils se sont concentrés sur la modification de la structure de bandes de trois matériaux ferromagnétiques : *Fe(001)*, *Co(001)* et *Ni(001)*, entraînant la modification de l'anisotropie magnéto-cristalline de ces couches.

Il a été indiqué que l'anisotropie magnétocristalline provient du couplage entre les bandes de spins minoritaires qui croisent le niveau de Fermi [66]. Ils se sont donc focalisés sur la structure de bandes des spins minoritaires, qui était celle présentant des modifications en champ électrique. Le bas des bandes des spins majoritaires étant plus éloignés du niveau de Fermi, ils seront considérés stables sous l'application d'un champ électrique.

Ils ont donc calculé la structure de bandes pour ces matériaux (cf fig. 2.14), et ont pu démontrer que, malgré de fortes similitudes entre les structures de bandes avec et sans champ électrique appliqué<sup>21</sup>, un couplage (hybridation) entre les différentes orbitales a modifié localement les propriétés en énergie, et ce, pour un niveau très proche du niveau de Fermi (cf flèches en fig. 2.14). Ceci conduit à une rupture entre certaines bandes (comme indiqué par les flèches) et un décalage en énergie. Cette valeur de décalage peut alors amener le nouveau profil d'énergie de bandes à

21. Ligne rouge et pointillés bleus respectivement représentés en fig. 2.14

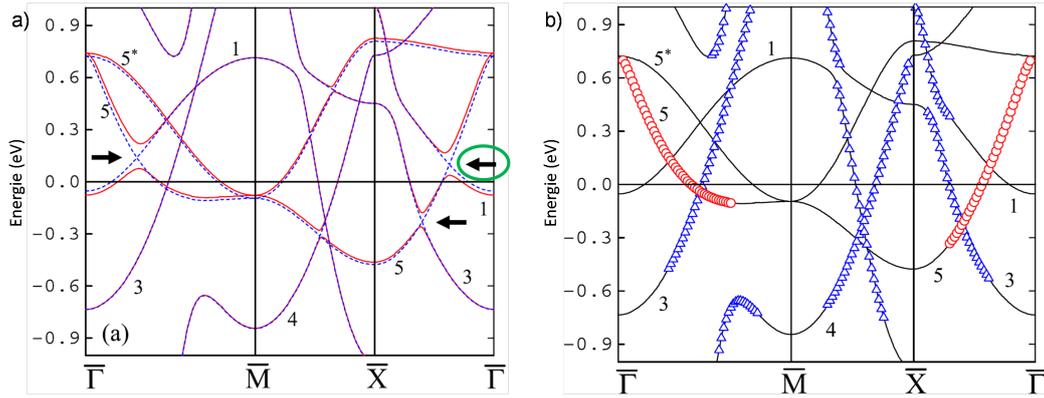


FIGURE 2.14: a) Structure de bandes des spins minoritaires calculée par Nakamura et al. [66] pour une monocouche de  $Fe(001)$ . Ce calcul s'est fait sans champ électrique appliqué (pointillés) ou avec un champ électrique de  $10V/nm$  (lignes rouges). Le niveau d'énergie à 0 représente le niveau de Fermi. Les bandes 1,3, 4, 5 et 5\* représentent les différentes orbitales  $d_{z^2}$ ,  $d_{x^2-y^2}$ ,  $d_{xy}$ ,  $d_{xz}$  et  $d_{yz}$ .  
 b) Calcul de la structure de bandes d'une monocouche de  $Fe(001)$  sans champ électrique, en mettant en évidence les bandes qui possèdent des composantes ( $> 1\%$ ) des orbitales  $p$ . Les ronds rouges représentent les composantes  $p_z$  et les triangles bleus les composantes  $p_{x,y}$ .

être très proche de la valeur de l'énergie de Fermi (cf flèche encerclée en fig. 2.14). Cela pourrait donc conduire à un décalage très fort passant au-dessous du niveau de Fermi pour des valeurs suffisantes de champ électrique, et ainsi conduire à un remplissage des bandes différent et donc à des modifications des propriétés magnétiques.

Cette hybridation est décrite comme poussée jusqu'aux états de nombre angulaire différent amenant ainsi à une hybridation entre les orbitales  $3d$  et  $2p$  du matériau. L'expression de faibles composantes des orbitales  $2p$ , proches du niveau de Fermi est l'une des raisons de ce couplage et donc de cette rupture et de ce décalage des bandes. L'expression de ces composantes est représentée en figure 2.14 b, les cercles représentant les composantes  $p_z$ , se couplant avec les orbitales  $d_{z^2}$ , et les triangles représentant les orbitales  $p_{x,y}$  se couplant avec les orbitales  $d_{xz,yz}$ .

*Notons que ces observations ont été déduites des calculs dans le cas du  $Fe(001)$ , car dans le cas du  $Co(001)$ , ce décalage en énergie apparaissait au dessous du niveau de Fermi et les états ainsi obtenus étaient occupés et ne contribuaient donc pas à une variation de l'anisotropie magnétocristalline.*

Ces modifications de la structure de bandes pourraient donc induire des variations de l'anisotropie de l'ordre de  $\approx 10 fJ/(V.m)$  et pourraient même jouer sur le signe de cette anisotropie d'interface [48,66].

Finalement, il est difficile d'établir une origine microscopique précise (unique) pour les effets décrits en section 2.1.3. Nous pourrions donc imaginer que l'application d'un champ électrique s'exprime par ces deux types d'effets, et qu'il y aurait, à la fois, une modification des états proches du niveau de Fermi, et que cela viendrait altérer le remplissage électronique des orbitales  $3d$ .

### 2.3.2 Migrations ioniques

Les effets observés par Bauer et al. [67] au sein d'un système de type  $Co/GdO_x$  sont bien plus importants que la gamme de  $10 - 100 fJ/(V.m)$  calculée dans le cas d'une pure accumulation de charges. La variation d'énergie d'anisotropie magnétique sous l'application d'un champ électrique est annoncée supérieure à  $5000 fJ/(V.m)$ , ce qui est 1 à 2 ordres de grandeur plus important que ce que nous sommes attendons dans le cas d'une simple accumulation de charges électriques aux interfaces.

Ils expliquent cela par un effet supplémentaire lors de l'application d'un champ électrique. En effet, pour ces fortes valeurs de tensions appliquées (4 à 5V sur 30nm de  $GdO_x$ ), une migration des ions oxygène  $O^{2-}$  au sein du diélectrique  $GdO_x$  est mesurée. L'application d'une tension positive sur la structure provoque un appauvrissement en ions oxygène proche des atomes de  $Co$ , se traduisant par une augmentation de l'anisotropie magnétique perpendiculaire. Ils ont ainsi été en mesure de réaliser une réorientation réversible de l'aimantation de leur couche de  $Co$ . En effet, ces effets de migrations ioniques ont modifié l'axe d'anisotropie de la couche de  $Co$  et l'aimantation a pu être manipulée entre une orientation dans le plan de la couche et une orientation perpendiculaire au plan de la couche. Ce renversement réversible est réalisé pour des échelles de temps importantes<sup>22</sup>.

Contrairement à une simple accumulation de charges aux interfaces du système comme dans le paragraphe précédent, cette modification du système implique un déplacement des atomes. Nous avons donc accès à un contrôle magnéto-ionique du magnétisme d'interface. Cette migration des ions  $O^{2-}$  a été vérifiée sous l'application d'une tension négative par des techniques de microscopie à transmission en mode balayage *STEM* permettant de déduire la composition du matériau sondé (*STEM - EELS*<sup>23</sup>). La mesure a été réalisée au centre de la couche de  $Co$ , de manière à réellement sonder les mouvements d'ions. La présence d'oxygène, qui n'était pas observée en champ électrique nul, est remarquée pour l'application d'une tension de  $-3V$  (cf fig. 2.15).

Bauer et al. [67], ont donc mis à profit un contrôle réversible par champ électrique de la stoechiométrie en oxygène à l'interface  $Co/GdO_x$  à laquelle l'énergie d'anisotropie magnétique est sensible. De forts effets sur l'anisotropie magnétique avec l'application d'un champ électrique avait été remarqué dans le passé, mais l'origine de ce contrôle de l'anisotropie magnétique n'avait pas été mentionné explicitement comme la conséquence d'un contrôle de la chimie d'interface du système métal ferromagnétique/oxyde [68].

Une étude numérique *ab-initio*, réalisée ultérieurement<sup>24</sup>, a défini la principale différence entre ces effets de pure accumulation de charges et de migration d'ions. Ibrahim et al. [63] ont réalisé un calcul de profil d'énergie en fonction du déplacement des ions oxygène à travers une couche de  $Fe$ . Pour chaque valeur de déplacement, ils ont calculé l'énergie relative par rapport à l'état initial. Ils ont ensuite confronté l'allure de ce profil avec la variation de l'anisotropie de surface obtenue en fonction de la progression de l'oxydation<sup>25</sup>. L'effet de pure accumulation de charges électriques à l'interface se définit comme la zone pour laquelle la chute de  $K_s$  est modérée et pour laquelle l'énergie croît continûment (cf fig. 2.16). A l'inverse, l'effet de migration d'ions se remarque lorsque l'évolution de  $K_s$  s'intensifie. Une barrière est alors visible dans le profil

22. Avec un pas de l'ordre de 50s et une période de transition au minimum égale à 25s

23. Pour scanning transmission electron microscope et electron energy loss spectroscopy en anglais

24. Étude réalisée en (2016), concomitante avec ma thèse

25. Donc de la progression des ions  $O^{2-}$  au sein de la couche de fer

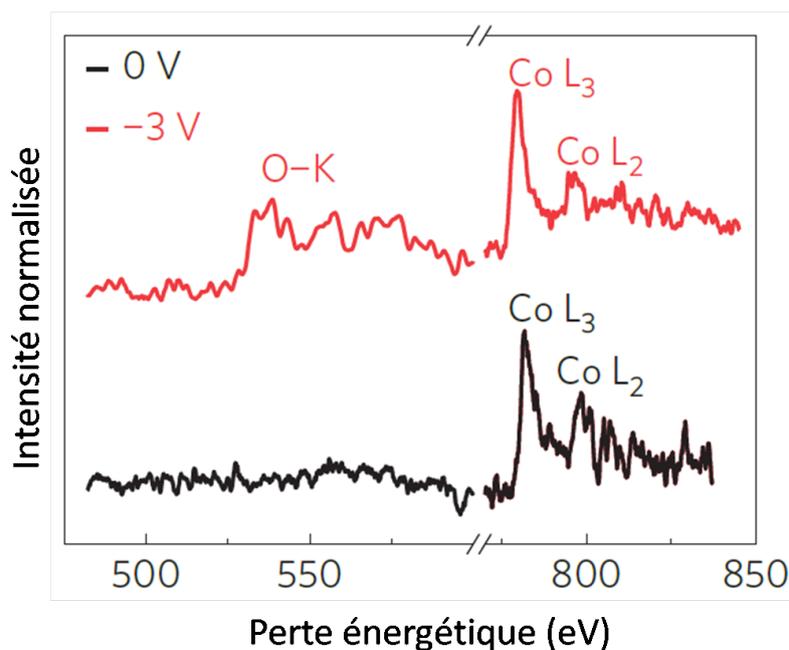


FIGURE 2.15: Mesures *STEM – EELS* au centre de la couche de *Co* du système étudiée en référence [67]. Ces mesures sont réalisées sans champ électrique appliqué (ligne noire) et après l’application de  $-3V$  (sur une épaisseur de  $30nm$  de  $GdO_x$ ) pour environ  $100s$  sur la structure (ligne rouge).

en énergie pour une certaine valeur de déplacement des ions sur toute la structure. Cette barrière représente l’énergie à apporter pour pouvoir amorcer le déplacement de l’oxygène d’une position à une autre. L’effet de pure accumulation de charges a été décrit comme agissant dans le cas d’un déplacement réversible d’oxygène<sup>26</sup>. A l’inverse l’effet obtenu après le dépassement de la barrière énergétique est qualifié d’irréversible<sup>27</sup>. Nous remarquons que dans le cas de Bauer et al. [67], cet effet avait été décrit comme réversible. Cependant la réversibilité était atteinte pour des échelles de temps importantes, qui ne sont pas mentionnées dans le travail de calcul du profil d’énergie de Ibrahim et al. [63].

### 2.3.3 Classification

Il faut donc faire la distinction entre les effets d’accumulation de charges et les effets que nous pourrions appeler effets de transfert de charges, pour lesquels la création d’une liaison chimique est à considérer ainsi que la modification chimique de l’interface étudiée. Une classification de ces effets a été réalisée de manière à lister l’intensité des effets obtenus pour différents systèmes, à température ambiante. Nous les avons représentés en figure 2.17. Les différentes méthodes de dépôt des couches y sont mentionnées. Les cercles verts décrivent les effets obtenus sur des couches déposées par des techniques de pulvérisation (sputtering) et les cercles rouges représentant des couches obtenues par épitaxie à jet moléculaire (*MBE*).

Nous remarquons que la classification des effets se fait d’elle-même sur ce graphe et que nous pouvons séparer les effets obtenus par migrations d’ions (ou bien par effet de contrainte, ou de charges piégées pas mentionnés ici), qui représentent des effets dans la gamme  $100 -$

26. Et représente un effet d’une dizaine de  $fJ/(V.m)$

27. Et représente un effet d’un millier de  $fJ/(V.m)$

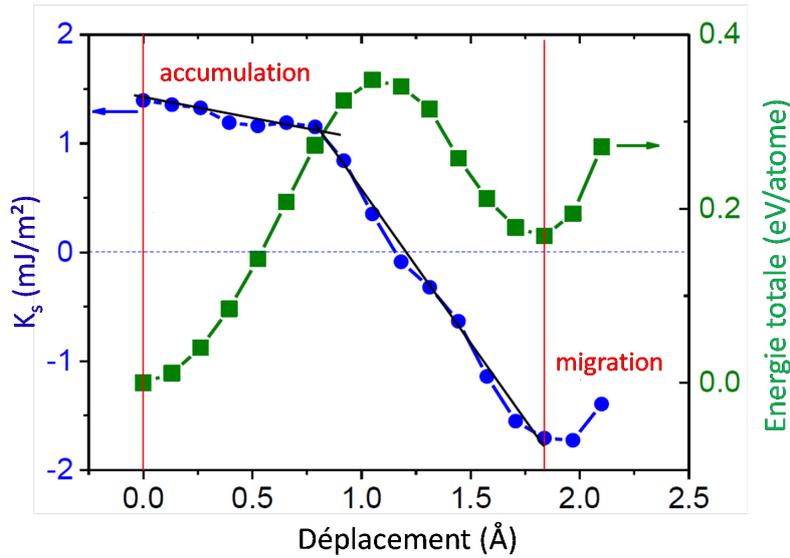


FIGURE 2.16: Profil d'énergie ( $eV/\text{atome}$ ) en fonction du déplacement des ions oxygène au sein du  $Fe$  pour le système  $Fe/MgO$  étudié par Ibrahim et al. [63]. Mise en évidence de la barrière d'énergie à franchir pour atteindre un régime irréversible de déplacement d'ions  $O^{2-}$  et calcul de l'anisotropie de surface associée  $K_s$  (en  $mJ/m^2$ ). Les régimes d'accumulation de charge et de migration ionique sont mis en évidence.

$10000 fJ/(V.m)$ , alors que les effets de pure accumulation de charges aux interfaces avec modification du remplissage des orbitales atomiques s'expriment dans une gamme  $0 - 100 fJ/(V.m)$ . Des études plus récentes ont reporté des valeurs plus importantes du coefficient  $\beta$  proche de  $260 fJ/(V.m)$  [69], pour un effet d'accumulation de charges sur un film ultra-mince de  $Fe$  (épaisseur plus faible que  $0,6 nm$ ), ou bien très proche de la centaine de  $fJ/(V.m)$  pour un autre groupe qui a intensifié l'effet en insérant une couche intermédiaire de  $Mg$  au sein de la structure de  $CoFeB/MgO$  [70]. Ces nouveaux résultats ont été rajoutés en figure 2.17.

Le défi actuel pour atteindre des vitesses d'écriture et une stabilité thermique suffisante serait d'être en mesure d'obtenir des effets proches de  $1000 fJ/(V.m)$  tout en restant dans le cas d'une accumulation de charges (aucun effet chimique irréversible n'étant souhaité). Cette intensité de l'effet permettrait de développer des jonctions de tailles comprises entre  $10$  et  $30 nm$  de diamètre. De nombreuses équipes travaillent donc actuellement sur ce point dans le monde entier.

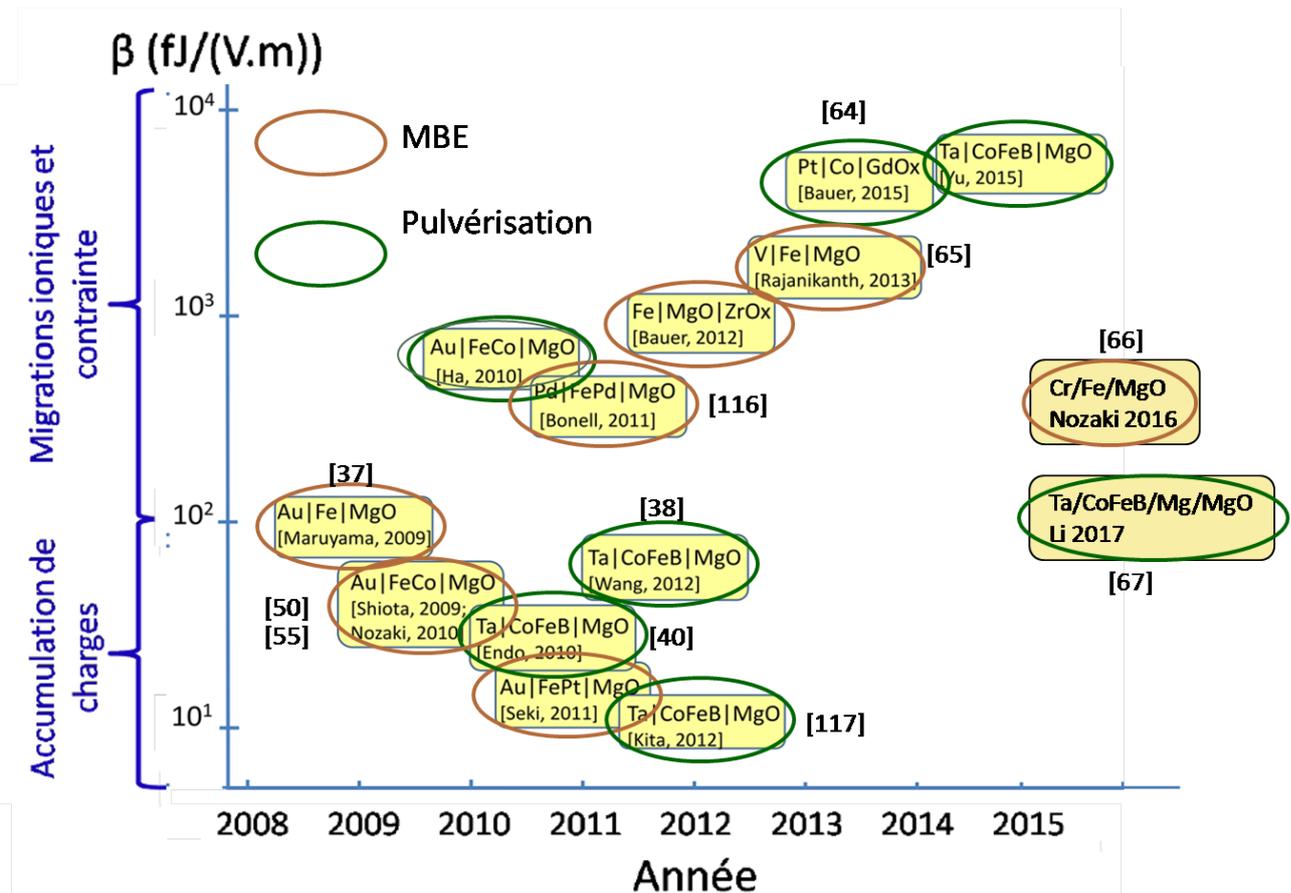


FIGURE 2.17: Intensité des effets de champ électrique sur l'anisotropie magnétique ( $fJ/(V.m)$ ) pour les différents systèmes mesurés au cours des années. Adaptée de [1], avec ajout des valeurs obtenues très récemment. *Les références bibliographiques de certaines études sont précisées.*

Je vais maintenant développer dans la seconde partie de cet état de l'art le contexte lié à la nucléation de texture magnétique particulière, auxquelles nous avons été confrontés lors de mes travaux de thèse.

## 2.4 Stabilisation de skyrmions

### 2.4.1 Texture magnétique particulière

Dans les systèmes de type tricouche que nous avons présentés au chapitre 1, en section 1.4, la compétition entre les différents termes d'énergies décrivant le système<sup>28</sup> est capable de favoriser un angle non nul entre un moment magnétique et ses proches voisins, qui peut se traduire par une rotation cycloïdale des moments magnétiques au sein du système. La période de rotation est fonction du rapport entre l'interaction d'échange  $DMI$  et l'interaction d'échange ferromagnétique. Ce type de rotation peut induire des textures magnétiques nouvelles, comme la phase cycloïdale (**plus généralement appelée spirale de spin**), ou encore le skyrmion magnétique. Ces objets ayant tous deux une chiralité fixée pour le sens de rotation de leurs moments magnétiques.

L'existence des skyrmions avait été prédite mathématiquement en 1961-1962 par Tony Skyrme qui avait prédit l'existence de singularités (particules) dans un système de méson [71]. Et ils ont été l'objet d'études théoriques depuis le début des années 1990 dans les systèmes magnétiques [72].

Généralement dans ces systèmes, ils existent sous deux formes qui sont les skyrmions d'interface, pour lesquels le type de paroi préférable magnétostatiquement est la paroi de Néel (cf chapitre 1 pour la description), et les skyrmions de volume, pour lesquels les parois préférées sont les parois de type Bloch. Ces deux formes sont représentées schématiquement en figure 2.18 dans le cas d'objets  $2D$ .

Ils peuvent être observés dans des systèmes qui n'ont pas de symétrie d'inversion. En effet, ce type de système fournit les directions utiles à l'expression d'un vecteur  $\vec{D}$ , intervenant grâce à l'anisotropie des interactions d'échange dans ces systèmes [8] (cf chapitre 1). Ce vecteur définit idéalement la chiralité que posséderont les parois de tous les skyrmions dans le système.

Historiquement, ces états de types réseaux de skyrmions ou spirales de spin<sup>29</sup> ont été définis comme pouvant être des états fondamentaux d'un système pour certaines conditions expérimentales, au même titre que l'état saturé ferromagnétique. Pour définir la texture magnétique attendue, il est nécessaire de définir le nombre topologique  $N_{sk}$  du système. Cette définition topologique est donnée pour un système de moment  $3D$  dans un objet  $2D$ . Dans le cas de notre texture skyrmionique, il se décrit comme le nombre de fois que l'aimantation de la texture va recouvrir entièrement la sphère unité prise comme référence pour une texture de type cycloïdale :

$$N_{sk} = \frac{1}{4\pi} \int \vec{M} \cdot \left( \frac{\delta \vec{M}}{\delta x} \times \frac{\delta \vec{M}}{\delta y} \right) dx dy = \pm 1 \text{ dans le cas d'un skyrmion, ou } 0 \text{ dans le cas d'un}$$

état ferromagnétique uniforme. Les skyrmions possèdent un nombre topologique non nul (1 ou  $-1$ ), ce qui leur confère une certaine stabilité par rapport à l'état ferromagnétique dont le nombre topologique est nul. Considérant une aimantation variant continûment dans l'espace, il est en effet impossible de passer de manière continue entre deux états dont les nombres topologiques

28. Énergies d'échange ferromagnétique et d'interface de type Dzaloshinskii-Moriya ( $DMI$ ), et énergie d'anisotropie (démagnétisante et magnétocristalline) - présentées au chapitre 1

29. Aussi appelés domaines en bandes (stripes), ces domaines sont périodiques et séparés par des parois de Néel de chiralité fixée ; ils ont été décrits en section 1.5.2 du chapitre 1 et le seront au chapitre 5

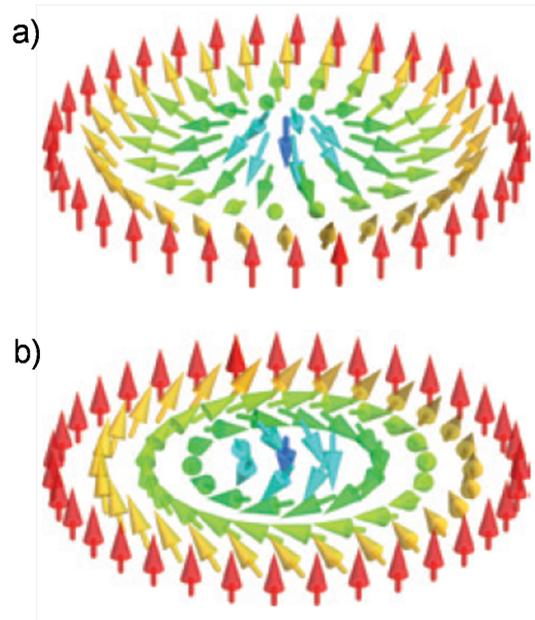


FIGURE 2.18: a) Skyrmion  $2D$  de type Néel, b) Skyrmion  $2D$  de type Bloch. Reportée de [73].

sont différents. Ce nombre topologique est un outil permettant de définir différentes classes d'objets, correspondant à différentes valeurs de ce nombre, au sein desquelles nous pouvons passer d'un objet à un autre en utilisant des déformations continues. De ce fait, une école de pensée a développé l'idée que les skyrmions pouvaient être considérés comme topologiquement protégés, et cela en faisait donc de très bons candidats pour les applications de type mémoires car leur temps de vie ainsi que leur résistance face aux défauts étaient considérés comme très importants. En effet, ce concept mathématique considère que l'aimantation varie continûment dans l'espace ( $2D$ ).

Or, le système réel est considéré comme un système atomique discontinu. De plus, au sein de systèmes réels, les conditions de dépôt des couches et leur rugosité, ainsi que l'agitation thermique, entravent en quelque sorte cette protection. Il est donc plus raisonnable de penser que la protection topologique au sens strict du terme n'existe pas, mais que l'environnement du skyrmion est plutôt représenté comme un profil en énergie avec différentes barrières (plus ou moins importantes) qui lui permettent de passer d'un état à un autre. En 2013, Romming et al. [74] ont remis en question cette école de pensée : "In a real system with magnetic moments on an atomic lattice, strict topological protection does not exist. Instead, the states are separated by a finite energy barrier". Cette rectification rejoint bien les conclusions faites par Ivanov et al. [72] deux décennies auparavant quant à l'effondrement d'un vortex magnétique, en réduisant son rayon jusqu'à égaliser le paramètre de maille du système. Dans ce cas là, il précisait que la description topologique n'était plus applicable et que des termes d'échange d'ordres supérieurs devaient alors être pris en compte : "The standard scenario of [...] vortex vanishing, which includes the initial decreasing of the radius up to  $R \approx a$ , when one cannot use the macroscopical description and topological methods [...] cannot be realized because at  $R- > 0$  the terms with  $(\Delta^2 \vec{m})^2$  and  $(\Delta \vec{m})^4$  are greatly increased", avec  $a$  le paramètre de maille du système.

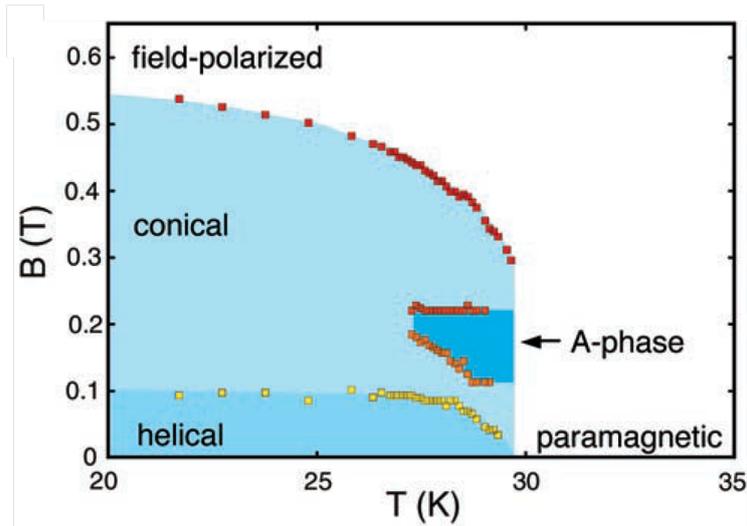


FIGURE 2.19: Diagramme de phases magnétiques du cristal de  $MnSi$  mesuré par Mühlbauer et al. [75] en fonction de la température de mesure et du champ magnétique appliqué. "Field polarized" correspondant à l'état ferromagnétique saturé, "paramagnetic" correspond à l'état paramagnétique, "A phase" représente la phase skyrmionique et "helical" et "conical" correspondent à la phase cycloïdale (domaines en bandes). Les auteurs font la distinction entre ces deux textures en décrivant le fait que la structure conique s'obtient à plus fort champ donc, que l'hélice est alors dirigée dans le sens du champ magnétique.

### 2.4.2 Premières mises en évidence dans les matériaux massifs - 2009

Malgré leur prédiction théorique assez anciennes, les skyrmions n'ont été mis en évidence expérimentalement que très récemment (2009) par Mühlbauer et al. [75]. Les skyrmions stabilisés par un  $DMI$  volumique ont d'abord été remarqués dans des cristaux ne possédant pas de symétrie centrale, en utilisant des techniques de diffraction neutronique, qui ont permis de faire la distinction, en fonction du champ magnétique appliqué, entre les phases cycloïdales (en hélice ou conique) et la phase skyrmionique, alors appelée alors phase  $A$  (cf fig. 2.19). Ces premières observations ont été réalisées à très basses températures, de manière à être dans la bonne gamme pour pouvoir déceler les phases cycloïdales. Une distinction est faite par les auteurs concernant l'orientation de la rotation des moments avec le champ magnétique appliqué (voir légende fig. 2.19). Dans notre cas, ces distinctions concernant les skyrmions de volume (donc stabilisés par un  $DMI$  volumique), nous n'aurons pas à nous référer à cela et parlerons de manière générale de phase cycloïdale ou spirale de spin<sup>30</sup>. De plus, dans ce genre de système les skyrmions de volume observés s'organisent sous forme de réseau hexagonal.

### 2.4.3 Mises en évidence dans les couches minces épitaxiées - 2011

La mise en évidence de skyrmions d'interface dans des systèmes de type couches minces présentant une brisure de symétrie simplement due à la présence d'interfaces, n'est intervenue que plus tard (2011) par des techniques de microscopie à effet tunnel utilisant un courant polarisé en spin ( $SP - STM$ ) [74, 77]. A nouveau, ces observations étaient réalisées à très basses températures (11K pour Heinze et al. [77] et 4 – 8K pour Romming et al. [74]), et en présence de

30. Notons qu'une distinction supplémentaire avait été faite de la part de Bode et al. [76] entre une phase en hélice et une phase cycloïdale, pour un matériau anti-ferromagnétique. La définition de chacune de ces phases est donc variable selon les cas étudiés.

champs magnétiques appliqués assez élevés [74] (cf fig. 2.20 b). Ces démonstrations ont permis de déterminer la gamme de champs magnétiques appliqués pour laquelle les skyrmions isolés sont des états métastables en équilibre énergétique avec une phase purement ferromagnétique (cf fig. 2.20 b). Ces deux études ont été réalisées sur des couches déposées par épitaxie :  $Fe/Ir(111)$  pour Heinze et al. et  $FePd/Ir(111)$  pour Romming et al. qui ont considéré que les moments magnétiques induits dans le  $Pd$  leur permettaient de considérer la couche  $FePd$  comme une seule entité magnétique (phase  $FePd$ ).

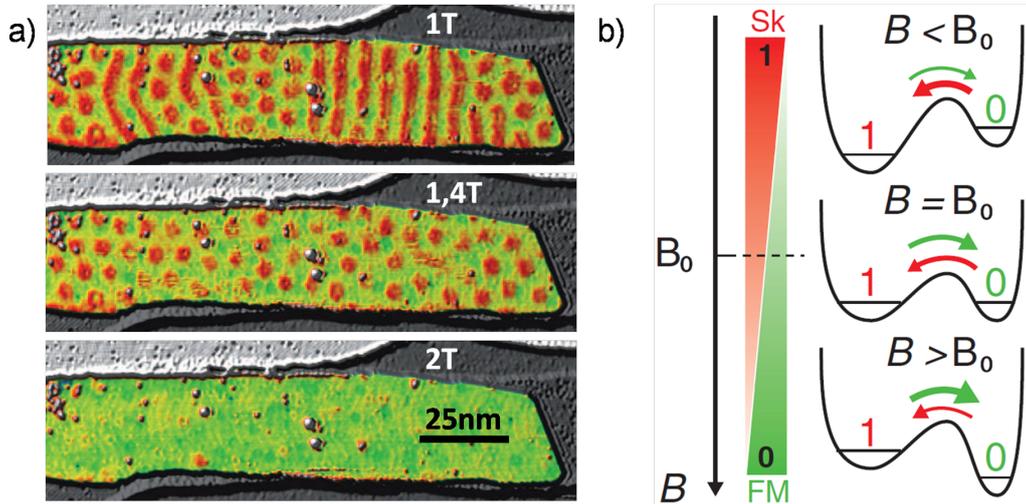


FIGURE 2.20: a) Phase  $FePd$  mesurée par Romming et al. [74] à différents champs magnétiques appliqués et en scannant avec une pointe  $STM$  à un potentiel  $U = 50mV$ .

b) Schéma simplifié représentant le champ magnétique d'équilibre  $B_0$  permettant d'avoir un mélange entre une phase skyrmionique et une phase saturée ferromagnétiquement dans la couche.

#### 2.4.4 Mise en évidence dans les couches minces pulvérisées - 2015

Il faudra attendre les années 2015-2016 pour observer des skyrmions d'interface à température ambiante, au sein de multicouches comportant un métal de transition et ayant été déposées par une méthode plus compatible avec l'industrie que celle d'épitaxie : la méthode de dépôt par pulvérisation cathodique à magnétron (cf chapitre 3 pour la description de la méthode). La qualité de ces films (structure cristalline) est généralement moindre comparée à celle des films dont la croissance est faite par épitaxie, et donc l'observation de la phase skyrmionique est alors un véritable défi.

##### Précisions sur les dimensions

Pour la plupart des systèmes dont les études ont reporté la présence de skyrmions d'interface à température ambiante, nous pouvons remarquer que ces objets présentent pour certains groupes des dimensions bien plus importantes (de l'ordre du  $\mu m$ ) que les objets qui ont été mis en évidence à basse température (entre 1 et  $10nm$  pour Romming et al. [74]). Nous parlerons donc dans ce cas de "bulles skyrmioniques". Les skyrmions et les bulles skyrmioniques présentent tous deux une chiralité fixée qui est définie par le signe du facteur  $D$ , et possèdent tous deux un diamètre d'équilibre. Cependant, nous pouvons décrire la bulle skyrmionique comme un skyrmion, dont le cœur serait plus large (cf fig. 2.21). A l'inverse des bulles magnétiques classiques, les bulles skyrmioniques seraient stabilisées par l'énergie démagnétisante, mais aussi par le facteur  $DMI$  ;

cette homochiralité rendant leur propagation possible sous l'application d'un courant de spin transverse.

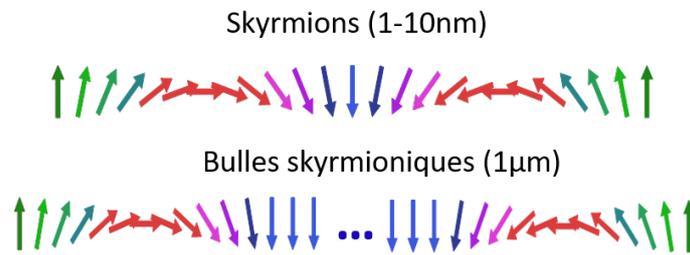


FIGURE 2.21: Illustration de la différence entre bulles skyrmioniques et skyrmions. La largeur du domaine central n'est pas réduite à un spin dans le cas de la bulle.

Actuellement, de nombreuses études théoriques sont en cours pour définir de manière plus précise les différences / similitudes qui existent entre tous ces systèmes chiraux. En effet, les prédictions théoriques avaient jusque là négligé le terme d'énergie dipolaire dans l'expression de l'énergie des skyrmions, qui finalement prennent part au diagramme de stabilité de ces objets micrométriques [78]. Un accent particulier est porté sur la transition entre ces objets de dimensions différentes, et la notion de protection topologique longtemps promue est en pleine évolution. Dans notre cas, nous nous référerons à la définition donnée auparavant de bulles skyrmioniques pour nommer les objets magnétiques que nous mettrons en évidence dans notre système (voir fig. 2.21).

Cette distinction est importante à préciser pour les applications. En effet, après les premières observations de bulles skyrmioniques à température ambiante pour des matériaux déposés par pulvérisation, le but est maintenant de pouvoir obtenir des skyrmions de petites tailles en vue d'applications comme la mémoire racetrack rapidement mentionnée en introduction de ce chapitre (section 2.1.1).

### Nucléation dynamique - 2015 :

Les skyrmions d'interface dans les couches minces déposées par pulvérisation ont d'abord été obtenus de manière dynamique au moyen de champs magnétiques ou de courants pulsés [79] ou bien dans des systèmes présentant une géométrie particulière permettant de briser l'uniformité de la densité de courant appliquée sur la structure [80]. En effet, grâce à la concentration de la densité de courant au sein d'une constriction, Jiang et al. [80] ont pu passer d'un système de domaines en bandes (stripes) à une phase skyrmionique sous l'application d'un faible champ magnétique ( $0, 5mT$ ), au sein d'une tricouche de type  $Ta/CoFeB(1, 1nm)/TaO_x$  (cf fig. 2.22), et ce, de manière réversible. De plus, ils ont remarqué qu'une fois les bulles skyrmioniques créées, ils étaient capables de les déplacer sous l'application de pulses de courant, et ce dans une direction commune à toutes les bulles. Ceci peut constituer une preuve de la chiralité fixée de ce type d'objet lorsque l'on élimine la possibilité de déplacement par transfert de spin. L'étude du mouvement des bulles sous courant est intéressante pour les applications telle que la mémoire racetrack. Ces observations expérimentales [80] ont été réalisées sur un microscope à effet Kerr, dont le principe sera décrit au chapitre 3 et les tailles des skyrmions obtenus étaient de quelques  $\mu m$ .

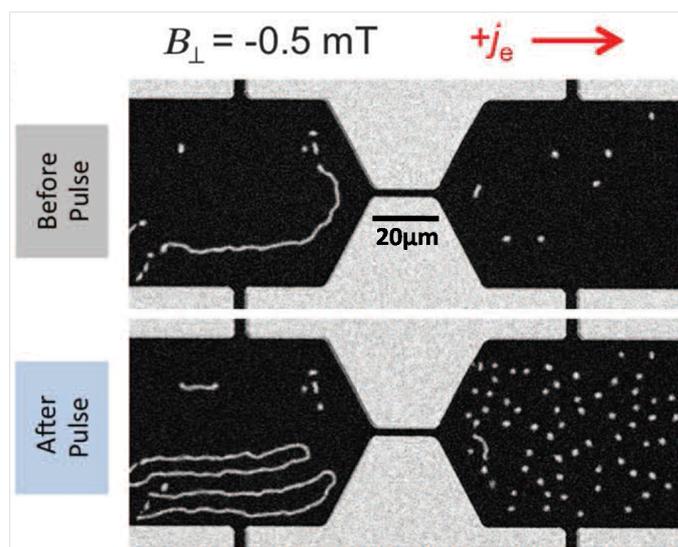


FIGURE 2.22: Images réalisées en microscopie Kerr par Jiang et al. [80] qui représentent la constriction utilisée dans leur échantillon pour rendre inhomogène les pulses de courant appliqués. Les skyrmions sont créés à droite de la constriction en partant d'un état de domaines en bandes à gauche, après l'application d'une impulsion de courant  $j_e$  de la gauche vers la droite.

### Nucléation "douce" - 2016 :

Puis, une connaissance plus profonde des propriétés des systèmes ont permis de commencer à piloter de manière douce la création de skyrmions dans des multicouches. En effet, Yu et al. [81] ont joué sur les paramètres magnétiques, plus particulièrement sur la valeur d'anisotropie de leur système :  $Ta/CoFeB(1, 1nm)/Ta/MgO/Ta$ , en utilisant une couche intermédiaire de  $Ta$  d'épaisseur variable (cf fig. 2.23 a). Ils ont ainsi pu déduire une gamme de paramètres, mettant en relation la valeur du champ appliqué sur la structure ( $H_z$ ) avec la valeur du champ d'anisotropie ( $H_k$ ), pour laquelle l'observation de skyrmions était alors rendue possible à température ambiante<sup>31</sup>. Ils se sont rendus compte que la gamme de valeurs pour laquelle une phase de skyrmions isolés (*Sky*) était obtenue était en fait très restreinte (cf fig. 2.23 a et b).

De leur côté, Boule et al. [82] ont reporté une valeur élevée du facteur  $DMI$  de  $2mJ/m^2$  pour leur système  $Pt/Co/MgO$ <sup>32</sup>. Ils ont donc mis à profit cette valeur très importante du facteur  $D$  pour stabiliser des skyrmions à température ambiante, sans l'application d'aucun champ magnétique extérieur. Pour ce faire, ils ont utilisé le fait que les skyrmions sont très sensibles à leur environnement, et qu'ils peuvent être stabilisés au sein de milieux confinés. Au moyen de procédé de lithographie, ils ont donc réalisé des motifs de différentes forme et taille et ont pu observer des skyrmions à température ambiante, tout en ayant accès à la direction de l'aimantation dans les parois grâce à des techniques d'imagerie y étant sensibles  $XMCD - PEEM$ <sup>33</sup> (cf fig. 2.24).

En parallèle à cette étude, Moreau-Luchaire et al. [83] ont été capables de stabiliser des skyrmions à température ambiante dont les dimensions se trouvaient dans la gamme  $50 - 90nm$  confinés au sein de motifs de nano-disques ( $300nm$  de diamètre) et de nano-bandes ( $200nm$  de large), pour des valeurs de champs magnétiques appliqués relativement faibles ( $\approx 8mT$ ). Leurs

31. A nouveau par des techniques de microscopie par effet Kerr

32. Mesurée par une technique de spectroscopie  $BLS$ , pour Brillouin Light Scattering en anglais

33. Microscopie électronique en photoémission, alliée à une méthode de détection de rayons X en dichroïsme circulaire magnétique

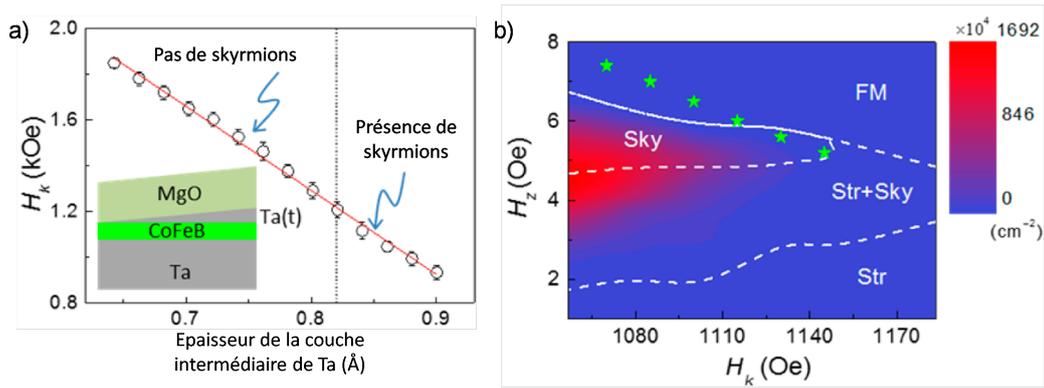


FIGURE 2.23: a) Schéma de la structure étudiée par Yu et al. [81] en encart et évolution de la valeur du champ d'anisotropie  $H_k$  en fonction de l'épaisseur de la couche intermédiaire ajoutée. La ligne rouge est un fit des mesures et la ligne en pointillé représente la limite  $(0, 82nm)$  après laquelle les skyrmions ne sont plus observées sous l'application d'un champ magnétique. b) Diagramme de configuration magnétique réalisé par Yu et al. pour leur structure. *Sky* représente la phase skyrmionique (skyrmions isolés), *FM* la phase ferromagnétique saturée et *Str* la phase en domaines en bandes (ou spirale de spin, ou encore cycloïdale, "*Str*" pour stripes en anglais). L'échelle de couleur représente la densité de skyrmions observée sur une surface de  $233 \cdot 174 \mu m$ .

observations ont été réalisées sur des multi-couches asymétriques de *Ir/Co/Pt*. La répétition de ces couches permet une plus grande stabilité thermique des skyrmions observés et le choix des métaux lourds utilisés avait été fait de manière à maximiser le facteur  $D$  total en étudiant le signe de l'effet apporté par chacun. Leurs observations alliées à leurs simulations leur ont permis d'extraire un fort facteur  $DMI$  ( $\approx 1, 9mJ/m^2$ ) et ils ont conclu que les dimensions des motifs de confinement n'avaient que peu d'effet sur la taille des skyrmions observés.

### Nucléation "douce" de bulles skyrmioniques par méthode électrique : contexte de la thèse

Nous avons donc vu que de nombreuses méthodes ont été employées pour mettre en évidence la présence d'une phase skyrmionique dans les systèmes de type multi-couches. De plus, de nombreux efforts ont été faits quant à l'étude de leur mobilité sous l'application d'un courant, en vue d'applications comme porteurs d'information. Cependant, peu d'études ont reporté une manière de créer ces objets magnétiques avec l'aide d'un champ électrique ou de courants polarisés en spin. En effet, leur création a été adressée théoriquement seulement par deux études [84, 85], qui se sont concentrées sur la génération de skyrmions à l'aide de courant appliqués. Sampaio et al. [84] ont modélisé la création de skyrmions dans des systèmes apparentés à une bicouche de *Pt/Co* à l'aide d'un transfert de courant polarisé en spin, injecté localement, au sein d'un disque de  $80nm$  de diamètre. Ils ont cherché à ajuster la valeur du courant seuil permettant la nucléation de ces objets en comparant plusieurs valeurs de constantes  $D$  et de densité de courant appliqué. Ils ont aussi fait une étude matériau et ont démontré que la nucléation de ces objets nanométriques était aussi liée au paramètre d'amortissement de Gilbert, qui diffère selon le matériau modélisé. Leur étude a été réalisée en négligeant les effets de fluctuations thermiques.

Romming et al. [74]<sup>34</sup> ont, quant à eux, réalisé la nucléation de skyrmions expérimentalement. Grâce à leur technique de microscopie à effet tunnel avec courant polarisé en spin, ils

34. Dont les travaux sont présentés en section 2.4.3

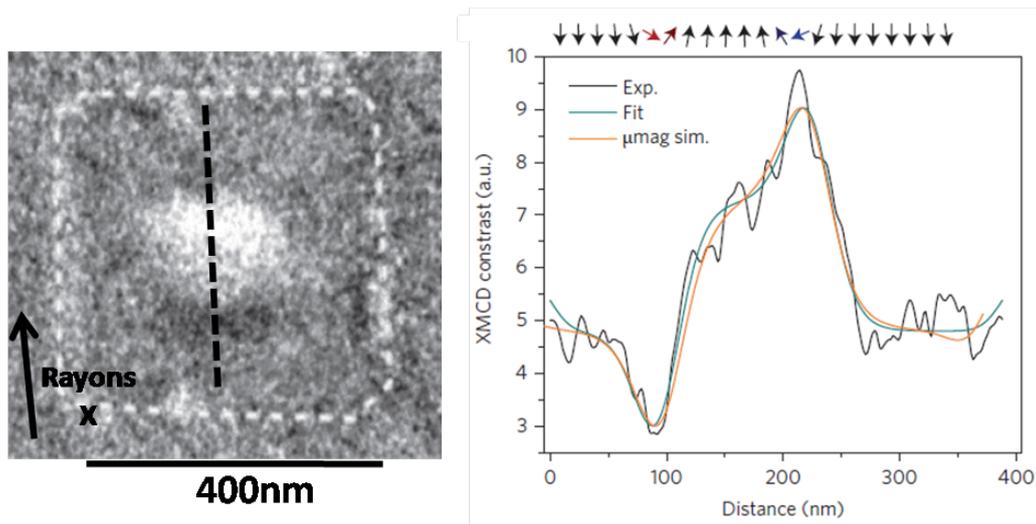


FIGURE 2.24: Image enregistrée en  $XMCD - PEEM$  par Boulle et al. [82] d'un skyrmion isolé au sein d'une structure de  $420\mu m$  de large (se repère aux pointillés blancs). La direction d'application des rayons  $X$  est précisée et les pointillés noirs représentent la direction du scan dont le profil  $XMCD$  est représenté sur l'image de gauche.

peuvent changer la valeur du courant (et de la polarité de la pointe,  $V$ ), donc l'énergie des électrons employée lors du scan. La variation locale de cet apport énergétique par la pointe  $STM$  leur a donc permis de venir créer et supprimer des skyrmions de manière réversible. Cette étude constitue donc la première mise en évidence de la nucléation de skyrmions à l'aide de l'application d'un champ électrique, assistée par l'application d'un fort champ magnétique ( $3, 25T$ ) et à très basse température ( $4, 2K$ ). Cet effet de switch a été réalisé sur des skyrmions considérés comme métastables à  $4, 2K$ , qui étaient localisés sur les défauts de la couche.

Au cours de la thèse, des études théoriques ont été publiées traitant théoriquement de la création de skyrmions purement par champ électrique [86, 87]. Nous verrons au chapitre 5 comment nous avons pu mettre en évidence un contrôle de la nucléation de bulles skyrmioniques uniquement avec l'application d'un champ électrique, à température ambiante et sous un très faible champ magnétique appliqué.

# Chapitre 3

## Techniques expérimentales

Ce chapitre décrit les nombreuses méthodes de dépôt, de micro-fabrication et de caractérisation que j'ai utilisées au cours de ces trois ans. Un accent particulier sera porté sur les méthodes qui ont été au cœur du travail de thèse, comme par exemple le procédé de photolithographie qui a été beaucoup utilisé au cours de ma thèse pour la définition de géométries particulières sur les échantillons, aidant à la caractérisation fine de ceux-ci, ainsi qu'à l'application du champ électrique sur les structures. La description complète des échantillons utilisés sera faite au chapitre suivant.

### 3.1 Méthode de dépôt des films minces

Je développerai dans cette première section les différentes techniques de dépôts qui ont été utilisées durant ma thèse. Le dépôt de la structure en tricouche, décrite au chapitre 1 (et qui le sera plus en détails au chapitre 4), a été réalisé par pulvérisation cathodique au laboratoire SPINTEC par Stéphane Auffret. Une technique de dépôt par couche atomique (*ALD*, pour atomic layer deposition en anglais) a été nécessaire pour le dépôt de la couche de diélectrique sur la structure magnétique, permettant l'application de forts champs électriques (voir chapitre 5). J'ai réalisé moi-même ces dépôts *ALD*. Enfin, j'ai déposé l'électrode supérieure permettant la connexion de notre échantillon pour les mesures en champ électrique (voir chapitre 5) par une technique de pulvérisation, cette fois-ci à l'institut Néel, sous la supervision de Philippe David.

#### 3.1.1 Méthode de dépôt des couches minces magnétiques par pulvérisation cathodique

##### Principe

Comme nous l'avons mentionné au chapitre 2, le dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique est une méthode très répandue de nos jours. Cette méthode présente plusieurs avantages parmi lesquels la rapidité de dépôt (en principe de l'ordre de l'Å/s), des conditions de dépôt sous un bon vide (*UHV* pour ultra high vacuum, vide de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar), le dépôt de matériaux variés (métaux, oxydes (diélectriques), alliages ...) et sa versatilité (le changement de cible étant facilement réalisable), ainsi qu'une très bonne adhérence des couches déposées<sup>1</sup>. Ce type de dépôt est aussi très utilisé en industrie (ce qui permet de viser directement le domaine applicatif), et surtout, cette méthode permet de réaliser des dépôts homogènes sur de larges surfaces, comparé à la méthode de dépôt par épitaxie (par jet moléculaire) qui ne permet d'obtenir que des petits échantillons. Cette méthode présente toutefois certains défauts (inhomogénéités)

---

1. Cette très bonne adhérence étant améliorée grâce au dépôt préliminaire d'une couche d'accroche par exemple

au sein de la couche, ce qui donne un matériau polycristallin, de moins bonne qualité cristalline (les dépôts étant réalisés à température ambiante).

Cette technique se qualifie de technique de dépôt par phase vapeur (*PVD*) et consiste à déposer les atomes de la cathode pulvérisés mécaniquement par les ions d'un plasma, vers le substrat. La chambre de dépôt est maintenue sous vide ( $\approx 10^{-9} \text{ bar}$ ), ce qui garantit la pureté des matériaux déposés.

Dans notre chambre de dépôt par pulvérisation cathodique, les matériaux cibles à pulvériser sont installés sur différentes cathodes et le substrat est fixé sur un bras mécanique, permettant son déplacement au sein de la chambre de dépôt, qui est maintenue sous vide. Le déplacement du substrat est réalisé dans le cas de dépôt multiples, tels que des multi-couches.

Un gaz neutre, l'argon dans notre cas, est introduit dans la chambre. Le plasma est ensuite obtenu grâce à l'ionisation des atomes de ce gaz, obtenue avec l'application d'une différence de potentiel appliquée entre la cible (cathode) et son enceinte (anode), qui elle est maintenue, en général, à un potentiel nul (cf fig. 3.1). Des ions  $Ar^+$  sont ainsi obtenus dans la chambre et vont être accélérés sur la cible (cathode). Ces ions vont donc entrer en collision avec les atomes de la cible, qui eux-mêmes vont gagner en énergie cinétique et être pulvérisés, puis se redéposer dans toute la chambre, y compris sur le substrat placé en face de la cible. Ceci est permis évidemment lorsque le cache séparant le substrat et la cible de pulvérisation est ouvert (cf fig. 3.1). Des étapes de pré-pulvérisations, cache fermé, sont réalisées de manière systématique pour vérifier la bonne mise en marche du plasma, pour préparer la chambre au dépôt et pour bien contrôler le temps de dépôt qui est de quelques secondes seulement.

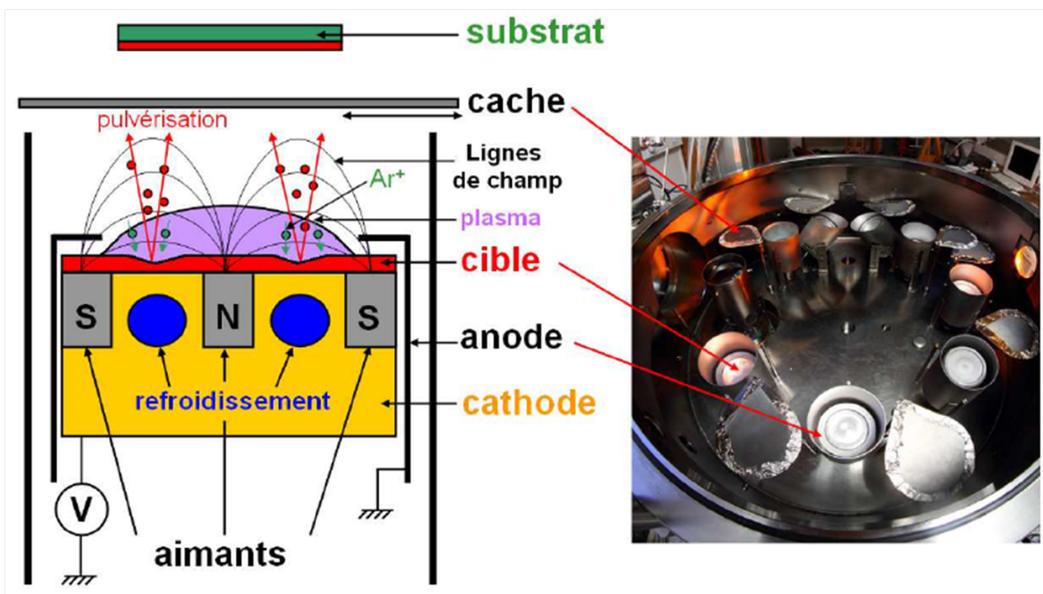


FIGURE 3.1: Reportée de [88] : schéma explicatif d'un bâti de dépôt par pulvérisation et photographie associée, représentant la chambre de dépôt avec les différentes cibles et caches. Les atomes de la cible pulvérisés sont schématisés en rouge et les ions  $Ar^+$  en vert.

La bonne connaissance des vitesses de dépôts en fonction du temps d'ouverture de ce cache permet donc de faire des dépôts de couches d'épaisseur inférieure au  $nm$ . Du fait de la forte énergie cinétique des atomes pulvérisés, la probabilité d'obtenir des couches mixées aux interfaces est grande dans le cas de dépôt de multi-couches. Ces fortes valeurs d'énergies sont aussi

la raison de la très bonne adhérence des matériaux pulvérisés sur le substrat.

Afin d'augmenter le nombre de collisions avec le gaz, et donc d'entretenir le plasma en induisant un plus grand nombre d'ions  $Ar^+$  dans la chambre, un magnétron est ajouté (cf fig. 3.1) et est installé dans la cathode. Le champ magnétique qu'il crée permet de diriger d'une certaine manière les électrons près de la surface de la cible, en leur fournissant une trajectoire de type hélice correspondante aux ligne de champ. Le plasma est donc confiné par le champ magnétique du magnétron et le rendement de pulvérisation en est augmenté.

Deux méthodes peuvent être utilisées dans le cas de dépôt de couches isolantes (oxydes), pour lequel les charges s'accumulent à la surface de la cible et réduit donc la pulvérisation des atomes par les ions  $Ar^+$  du plasma. La différence de potentiel appliquée entre la cible et son enceinte ne le sera donc plus de manière continue (*DC*) mais alternative (régime *RF*), inversant à haute fréquence le signe de la tension appliquée sur la cathode, et évitant ainsi le phénomène de charge.

Nous pouvons aussi déposer une couche métallique et réaliser ultérieurement son oxydation. C'est cette méthode qui a été utilisée au cours de ma thèse pour le dépôt de la couche d'alumine, la couche supérieure de nos échantillons (cf description au chapitre 4). La couche métallique est donc déposée en régime *DC* dans la chambre de dépôt, puis est oxydée dans une chambre d'oxydation sous un plasma d'oxygène à une puissance *RF*. La qualité et la stoechiométrie de l'oxyde obtenu sont alors gouvernées par la pression d'oxygène et le temps d'oxydation employés. Ce procédé d'oxydation dit "par plasma d'oxygène" diffère de l'oxydation naturelle, qui elle est réalisée dans la chambre d'oxydation en présence d'un flux constant d'oxygène. Cette méthode est alors plus longue mais moins agressive que celle par plasma.

En conclusion, la vitesse et les qualités de dépôt obtenues sont fonction de nombreux facteurs expérimentaux, tels que la puissance du plasma<sup>2</sup>, la pression de base utilisée, les structures cristallographiques des différents matériaux déposés, l'orientation préférentielle du substrat, ou encore la température de dépôt (qui sera la température ambiante dans le cadre de cette thèse). Précisons que tous nos dépôts ont été réalisés sur des substrats de silicium oxydé thermiquement  $Si/SiO_2$ , de  $525nm$  d'épaisseur, pour éviter tout court-circuit avec le substrat lors de nos mesures.

### Gradient d'épaisseur

Afin d'obtenir le gradient d'épaisseur qui sera décrit au chapitre 4 lors du dépôt des couches, une méthode dite "off-axis" peut alors être utilisée. Il s'agit de réaliser le procédé de pulvérisation et donc de dépôt en introduisant un décalage fixé,  $d$ , entre la cible et le substrat (cf fig. 3.2).  $d = 100mm$  dans notre cas, pour avoir une chute linéaire de l'épaisseur d'alumine (cf encart en fig. 3.2 b)). La calibration de cette pente est réalisée pour de fortes épaisseurs déposées (ici entre  $80$  et  $6nm$ ), et nous considérons une équivalence pour cette pente à plus faibles épaisseurs (du moins pour la valeur du décalage  $d$  où l'évolution est linéaire). En jouant ensuite sur le temps de dépôt, la valeur d'épaisseur déposée et sa pente peuvent être contrôlés.

### 3.1.2 Méthode de dépôt du diélectrique par *ALD*

Le dépôt par couche atomique nous a été utile pour le dépôt d'oxyde (diélectrique, cf chapitre 5) qui servira de barrière lors de l'application d'un champ électrique.

---

2. De manière à avoir le nombre optimal de collisions ions-cible

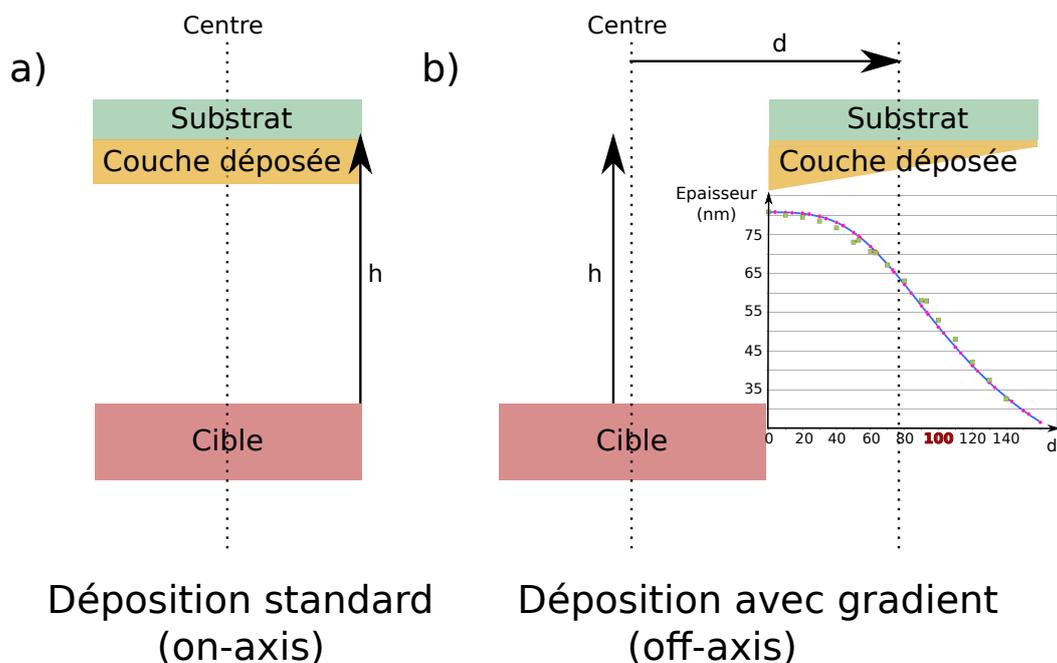


FIGURE 3.2: Type de dépôt au sein de la machine de pulvérisation. Schématisation du type de dépôt dit "off-axis" utilisé au cours de ma thèse pour réaliser des gradients d'épaisseur. Figure similaire à [4]. En encart est présenté le type de calibration de gradient en fonction du décalage  $d$ , réalisée pour de fortes valeurs d'épaisseurs. La valeur de décalage choisie est celle pour laquelle la variation est la plus linéaire.

Cette méthode de dépôt de couche mince consiste à exposer le substrat à différentes espèces gazeuses, appelées précurseurs. En effet ces composés gazeux contiennent les éléments qui vont être déposés en couche solide. Les différents précurseurs sont injectés par jets réguliers dans la chambre de dépôt maintenue sous vide primaire, et l'épaisseur finale déposée est fonction de ce nombre de cycles. Nous avons utilisé un mélange de deux oxydes pour constituer notre diélectrique, nous mentionnerons ici les étapes de dépôt par couche atomique de l'un deux : l'alumine,  $Al_2O_3$ . Ces différentes étapes sont représentées en figure 3.3 et leur ensemble constitue l'équivalent d'un cycle.

Le précurseur de l'aluminium ( $TMA^3$ ) est donc injecté dans la chambre par un jet de durée  $0,015s$  définissant la quantité de précurseur injecté (étape  $i$ . en fig. 3.3). Un temps de pause (purge en maintenant le pompage) ( $10s$ ) permet au précurseur de s'adsorber à la surface du substrat (oxydé) qui possède des terminaisons  $-OH$  à sa surface. Le gaz non adsorbé (méthane,  $CH_4$ , et reste de  $TMA$ ), et alors en excès dans la chambre, est retiré après ce délai grâce au pompage continu de l'enceinte de dépôt (étape  $ii$ .). De plus le dépôt se stoppe à une seule monocouche d'aluminium fixé sur les groupements  $-OH$ . Ceci est dû à l'encombrement stérique des groupements méthyle  $-CH_3$ , qui bloquent l'adsorption de l'aluminium.

De la vapeur d'eau est ensuite introduit dans la chambre avec la même durée de pulse que pour la  $TMA$ . Une réaction de substitution va alors avoir lieu à la surface, les ions oxygène du précurseur de l'eau venant remplacer les groupement méthyles  $-CH_3$  (étape  $iii$ .). Une seconde purge de  $10s$  sera à nouveau marquée le temps de cette réaction. La dernière étape est une étape de purge de l'enceinte grâce au pompage visant à éliminer les restes de gaz précurseurs et de méthane alors encore présents dans l'enceinte (étape  $iv$ .).

3. Triméthylaluminium

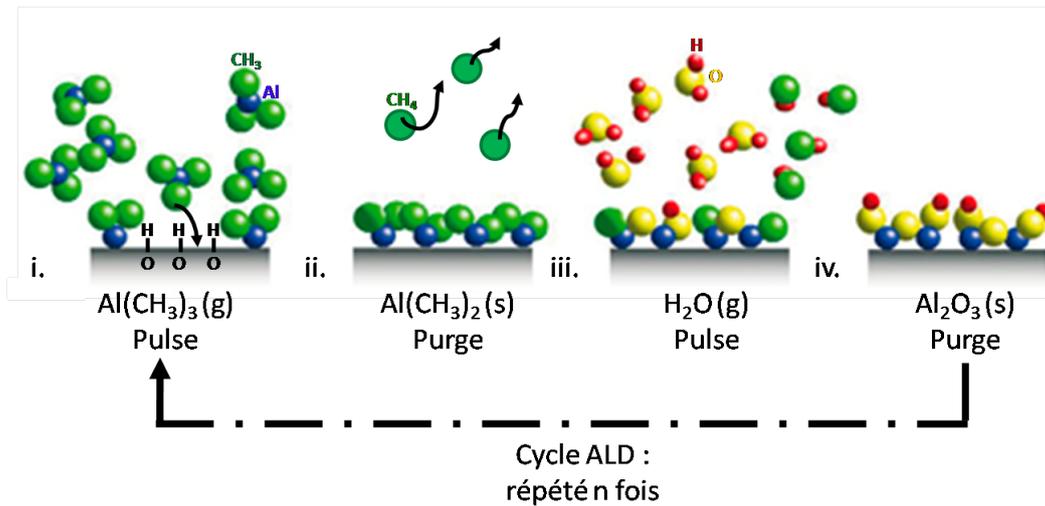


FIGURE 3.3: Schéma d'un cycle complet de dépôt *ALD*. *g* correspond à la forme gazeuse et *s* la forme solide.

*i.* : Jet du précurseur d'aluminium, *TMA*, et adsorption de ce groupement sur les liaisons  $-OH$  à la surface du substrat. Dégagement de méthane  $CH_4$ .

*ii.* : Purge du système, retrait de la *TMA* en excès et des groupements  $CH_4$  libres.

*iii.* : Pulse de vapeur d'eau  $H_2O$ , venant remplacer petit à petit les liaisons  $Al-CH_3$  par des liaisons  $Al-OH$ .

*iv.* : Purge de la chambre de dépôt, retrait des groupements méthyles et de l'eau en excès. La surface est alors composée de liaisons finales  $Al-OH$  et un nouveau pulse de *TMA* peut alors être effectué pour déposer la deuxième monocouche d'alumine.

Figure reportée de <https://beneq.com/en/thin-films/technology/atomic-layer-deposition>.

Ce cycle est donc répété *n* fois selon l'épaisseur de l'oxyde désirée. Nous avons réalisé des mesures complémentaires d'ellipsométrie (qui seront mentionnées au chapitre 5), qui nous ont permis de déduire une vitesse de dépôt proche de  $0,12nm$  pour 1 cycle complet dans le cas de l'alumine.

La qualité du dépôt est fonction de la durée de ces étapes de purges, ainsi que de la durée des jets de précurseurs injectés. Des temps de purges suffisamment longs permettent d'obtenir un alumine de très bonne qualité isolante. Nous pouvons aussi changer la température de dépôt. Celle-ci prévoit des couches plus homogènes pour une température de dépôt élevée ( $250^{\circ}C$  est la température habituelle de dépôt dans ces battis).

Dans notre cas, réaliser un dépôt assez long (entre 2 et 3 heures selon le nombre de cycles choisi) à si haute température peut induire un recuit de nos couches déposées par pulvérisation et altérer leurs propriétés magnétiques (en augmentant l'interdiffusion des couches aux interfaces). Nous avons choisi de faire le dépôt *ALD* à une température de  $100^{\circ}C$ , un bon compromis pour minimiser l'interdiffusion des couches déposées précédemment par pulvérisation cathodique et obtenir une couche d'alumine suffisamment isolante pour nos applications [4].

Nous allons maintenant décrire dans une deuxième section les techniques employées pour la micro-fabrication de structures utiles aux différentes techniques de caractérisation qui seront décrites dans une troisième section.

## 3.2 Méthodes utilisées pour la micro-fabrication des échantillons

Ces techniques de photolithographie *UV* représentent une grosse partie de mon travail de thèse. En effet, j'ai réalisé de nombreux tests de durée d'insolation pour des masques réalisés en plastique ou bien en verre, pour avoir la meilleure résolution possible dans la définition de géométries particulières sur l'échantillon, tout en étudiant quelles étapes lors du procédé de micro-fabrication pouvait être critique pour les propriétés magnétiques du matériaux utilisé. J'ai aussi étudié quelle méthode de développement était la plus appropriée selon l'étape dans le procédé de micro-fabrication.

### 3.2.1 Photolithographie

La photolithographie, ou lithographie *UV* est un procédé visant à définir une géométrie particulière pour la couche étudiée en transférant un motif à partir d'un masque. Nous pouvons mentionner par exemple une géométrie en croix de Hall pour les mesures de magnéto-transport, qui seront décrites à la section suivante. Ou bien en bandes droites, ce qui aide à mesurer les vitesses de parois de domaines.

Le principe est basé sur le transfert d'une structure géométrique dessinée sur un masque, sur une résine photosensible qui est déposée au préalable sur notre échantillon, ceci en exposant l'ensemble à la lumière. Pour cela, nous avons utilisé l'aligneur de lithographie par contact, *MJB3*, avec lampe *DUV* (Deep *UV*) de la plateforme Nanofab.

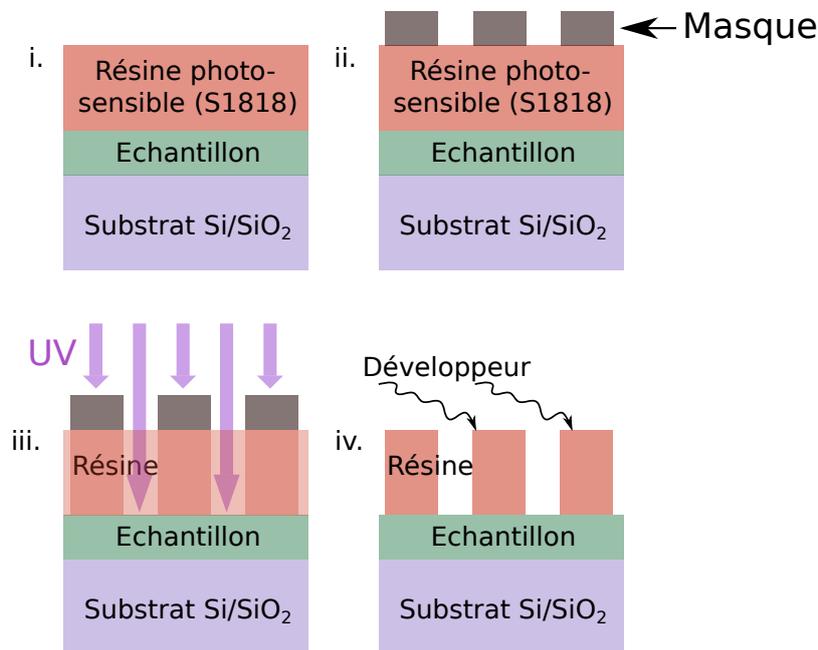


FIGURE 3.4: Différentes étapes nécessaires à la définition d'un motif sur l'échantillon. Ces étapes sont décrites dans le texte. *iii.* représente l'exposition à la lumière *UV*. Figure adaptée de [4].

La résolution que nous pouvons obtenir en lithographie *UV* concerne des géométries dont les dimensions peuvent aller jusqu'à  $10\mu\text{m}$  de large. Pour des motifs plus réduits en dimension, il faut alors utiliser une méthode de lithographie électronique.

Nous allons décrire les étapes nécessaires pour obtenir un motif. Nous avons utilisé une résine photosensible standard de type Shipley S1818. Cette résine étant positive, les parties qui sont exposées à la lumière seront dissoutes lors du développement après insolation. Elle est déposée par centrifugation grâce au Spincoater de la plateforme Nanofab, et a une épaisseur estimée à  $\approx 1,8 \mu\text{m}$  de résine [4]. Cette résine est ensuite recuite à  $115^\circ\text{C}$  durant une minute afin d'éliminer le solvant encore présent. Cette étape correspond à l'étape *i.* de la figure 3.4.

Ensuite le masque est mis en contact avec l'échantillon et une étape d'alignement avec les motifs définis au cours de lithographies précédentes peut être nécessaire (étape *ii.*).

S'ensuit alors une étape d'exposition de l'ensemble à la lumière *UV*. Selon la puissance de l'appareil et le type de masque utilisé (plastique ou verre), les temps d'insolation pouvaient différer (étape *iii.*). L'exposition directe à la lumière induit une modification des propriétés chimiques de la résine, les zones exposées seront alors sensibles à la solution utilisée pour le développement.

L'étape de développement consiste alors à plonger l'échantillon + résine insolée dans la solution utilisée comme développeur, durant 1 minute. La résine insolée se dissout et fait apparaître la géométrie souhaitée dans la résine non-insolée. La géométrie est alors visible (étape *iv.*). Nous réalisons ensuite un rinçage de l'ensemble dans l'eau distillée durant 1 minute.

Nous allons maintenant décrire deux types de procédé de micro-fabrication qui peuvent être employés après cette étape préliminaire de photolithographie.

## 3.2.2 Méthodes de développement

### Lift-off

La technique dite de "lift-off" consiste à déposer un nouveau matériau sur tout l'échantillon : le matériau adhère à l'échantillon dans les zones où il n'y a plus de résine. Cette méthode est qualifiée d'additive (comparé à une méthode de gravure soustractive, "etching", que nous décrirons par la suite). Cette technique est résumée en figure 3.5 a). Après ce dépôt une étape de rinçage est nécessaire (généralement dans de l'acétone) venant éliminer la résine restante ainsi que le matériau qui se trouvait au-dessus. La géométrie ainsi définie sera représentée par les motifs restants sur les zones qui avaient été insolées. De plus, un phénomène dit de "de lift-off ears" peut être obtenu. L'épaisseur du métal couvrant les bords du motif en résine peut être plus importante et peut être mal retirée lors du procédé de lift. Ce métal peut alors tomber sur le reste de la structure et créer une couche supplémentaire non désirée.

Les principaux avantages de cette technique sont sa rapidité et le fait qu'elle ne requiert pas l'utilisation de technique particulière. Toutefois, la qualité du motif peut être altérée par le fait que les particules de métal en solution peuvent se redéposer de manière aléatoire sur l'échantillon, induisant parfois des court-circuits non désirés.

### Gravure

La méthode de gravure par faisceau d'ions ("ion beam etching") se décrit comme la complémentaire de la méthode de lift [4]. Elle consiste à diriger un faisceau d'ions sur la surface de l'échantillon photolithographié et le bombardement de ces ions sur les atomes de la surface vient les arracher, grâce à un transfert de moment cinétique. Ceci se produit dans les zones non protégées par la résine (cf fig. 3.5 b)) et le motif de la résine est donc transféré sur l'échantillon. La résine restante est ensuite dissoute dans l'acétone.

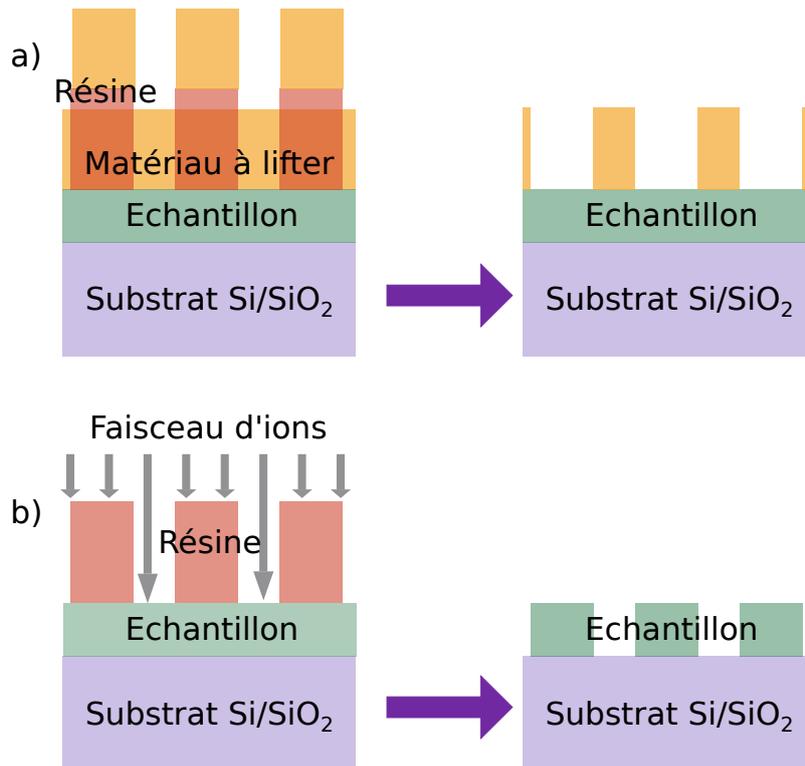


FIGURE 3.5: a) Méthode dite de "lift-off", ou de définition d'un motif par arrachage après le dépôt du matériau à définir.

b) Méthode dite de gravure "etching" qui consiste à définir le motif désiré en gravant directement le matériau.

Figure adaptée de [4].

Cette méthode requiert un équipement spécial et est donc réalisée dans une chambre de gravure, maintenue sous vide secondaire durant toute l'étape de gravure. Un spectromètre de masse (*SIMS*<sup>4</sup>) permet de contrôler la progression de la gravure. L'échantillon est mis en rotation pour graver de manière homogène. Le suivi du procédé de gravure grâce au *SIMS* permet d'avoir une idée très précise sur les vitesses de gravure et donc de s'arrêter dans une couche déterminée. Cette méthode est considérée comme plus propre que le lift, car le pompage permanent de la chambre élimine les atomes retirés en surface et aucun phénomène analogue au "lift off ears" n'est attendu. Cependant, la forte énergie des ions du faisceau induit un léger recuit des extrémités des zones à graver, et cela peut entraîner une modification locale des propriétés magnétiques des matériaux.

Au cours de cette thèse, la méthode de gravure a surtout été utilisée pour créer des motifs au sein de notre métal ferromagnétique. Et la méthode de lift a été employée pour définir les motifs du diélectrique et des contre-électrodes d'*ITO*, utiles à l'application du champ électrique.

### 3.3 Méthodes de caractérisation utilisées

Je vais maintenant décrire les principales méthodes de caractérisation utilisées durant ma thèse avec des exemples de mesures pour illustrer mes propos. Ces méthodes seront décrites très précisément car elles ont été au cœur de mon travail de thèse.

4. Spectrométrie de masse à ionisation secondaire, permet de revenir à la composition du matériau gravé, et surtout à contrôler la progression de la gravure

Pour plus de clarté, nous listerons les instruments utilisés dans leur ordre d'apparition au chapitre 4, où sera donnée la caractérisation complète des échantillons de ma thèse.

Chacun de ces instruments (utilisés à l'institut Néel) a été complémentaire des deux autres et présente un avantage notoire. Je mentionnerai tout d'abord les mesures réalisées par microscopie à effet Kerr, dont l'avantage est le fait que des mesures très locales peuvent être réalisées. Ensuite, je décrirai les mesures de magnétométrie réalisées sur un appareil *VSM – SQUID* qui ont l'avantage d'être l'outil de caractérisation permettant d'obtenir une mesure quantitative du moment magnétique. Enfin, je finirai par mentionner les mesures magnéto-transport d'effet Hall extraordinaire dont les avantages sont multiples dans notre cas, parmi lesquels l'accès à une mesure locale et en température.

### 3.3.1 Imagerie et cycles en microscopie à effet Kerr - configuration polaire

#### Notions sur l'effet Kerr

L'effet Kerr est un effet magnéto-optique mesuré en réflexion. John Kerr avait observé en 1877 que la polarisation linéaire de la lumière était altérée par l'introduction d'un angle de rotation de l'axe de polarisation  $\theta_k$  après avoir été réfléchi par une surface magnétique [89]. De plus, cette réflexion introduit une ellipticité dans la polarisation de la lumière : elle n'est alors plus polarisée linéairement mais elliptiquement.

Dans notre cas, une diode est source de lumière non-cohérente qui va être polarisée rectiligne par un polariseur présent sur le microscope (cf schéma en fig. 3.6 a)).

Selon la configuration de mesure, la rotation de l'axe de polarisation de la lumière sera proportionnelle à l'une des composantes de l'aimantation (planaire ou perpendiculaire, voir fig. 3.6 a) et b)). Elle est sondée à l'aide d'un second polariseur nommé analyseur, pour lequel nous pouvons faire varier l'angle, de manière à obtenir le maximum de contraste lorsque l'on atteint  $\theta_k$  (cf schéma en fig. 3.6 a)). De plus, la rotation change de signe pour une composante de l'aimantation renversée ( $\pm \vec{M}$ ). Ainsi, dans une configuration donnée, le signal optique mesuré après un analyseur verra son intensité modifiée selon le signe de l'aimantation. Un échantillon présentant des domaines magnétiques montrera donc un contraste en microscopie Kerr. Cette technique est donc adaptée pour sonder les variations d'aimantation au sein d'un système, sans avoir recours à aucun procédé de micro-fabrication. De plus, aucun signal parasite n'est attendu de la part des couches sous-jacente non-magnétiques (donc non-sensible à un effet magnéto-optique), ce qui facilite les mesures de structure en multi-couches. Cependant, l'observation Kerr n'est plus possible si la couche magnétique est recouverte d'une couche de capping trop épaisse ou non transparente.

Les différentes configurations de mesure sont représentées en figure 3.6. L'effet Kerr longitudinal (fig. 3.6 a)) est utilisé pour les échantillons à aimantation planaire. Le plan d'incidence de la lumière polarisée est parallèle à la direction de l'aimantation détectée. Cette lumière polarisée linéairement entre en contact avec la surface magnétique sous un certain angle  $\theta$  (généralement en incidence rasante pour avoir le maximum de sensibilité). La lumière elliptique réfléchi présente donc une rotation de son axe de polarisation (alors correspondant au grand axe de l'ellipse) qui est reliée à l'aimantation planaire de l'échantillon.

La configuration polaire (cf fig. 3.6 b)) est utilisée pour détecter une aimantation perpendiculaire. Le vecteur d'onde de la lumière incidente est alors normale à la surface magnétique (maximum de sensibilité). La rotation de l'axe de polarisation d'un angle  $\theta_K$  est ici proportionnelle à la composante perpendiculaire de l'aimantation du système.

La configuration transverse (cf fig. 3.6 c)) est analogue à la configuration longitudinale, mais avec cette fois-ci une aimantation planaire perpendiculaire au plan d'incidence de la lumière est

détectée. Dans ce cas, aucune rotation de la polarisation de la lumière n'est observée, mais c'est ici la variation de l'intensité lumineuse (réfléchi) qui est proportionnelle à l'aimantation planaire de la structure.

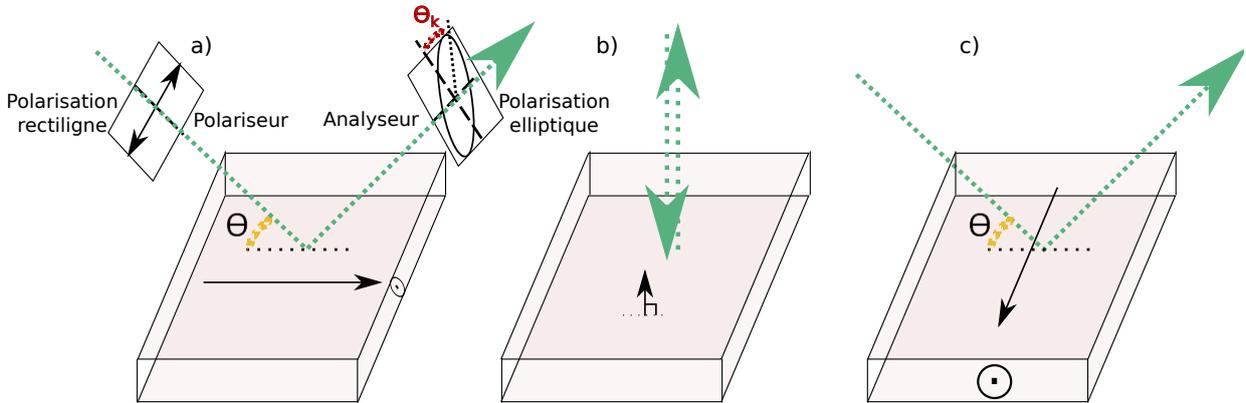


FIGURE 3.6: Configurations en microscopie Kerr, avec l'angle d'incidence de la lumière  $\theta$  :  
a) Longitudinale, avec précisions sur la polarisation de la lumière incidente rectiligne et de la lumière réfléchiée elliptique. La rotation de l'axe de polarisation d'un angle  $\theta_k$  est proportionnelle à l'aimantation.  
b) Polaire.  
c) Transverse.

Je n'ai utilisé pendant ma thèse que la configuration polaire, puisque mes échantillons présentant une anisotropie perpendiculaire.

### Description de l'appareil

La complète description du microscope à effet Kerr utilisé durant la thèse a été réalisée dans le travail de thèse de F. Ferraro [4]. Nous pouvons rappeler que le système utilisé a été mis en place et interfacé durant le stage de Lukas Flajsman sous la supervision de Pierre Molho et de Laurent Ranno. Grâce à un système de pilotage motorisé, le déplacement de l'échantillon est rendu possible de manière automatique selon les trois directions ( $z$  pour régler le focus et  $x$  et  $y$  pour se déplacer sur l'échantillon). Ce système motorisé présente de nombreux avantages. Par exemple, nous pouvons réaliser le scan automatique en  $2D$  d'un échantillon en fixant le pas de déplacement  $\geq 1\mu m$ . De plus, ces moteurs permettent de mesurer avec précision l'aire des échantillons. Cet outil nous aura servi lors du traitement des mesures *VSM - SQUID* qui sera décrit en section 3.3.3.2.

Nous pouvons aussi changer facilement de longueur d'onde pour les mesures, le Kerr possède un panel de *LED* rouge, verte, bleue ou bien blanche facilement interchangeables. Ceci a été utile dans le cas de mesure d'échantillon lithographié dont les différentes couches présentaient de fortes différences dans leur coefficient de réflexion<sup>5</sup>.

Finalement, grâce au montage "Kube" comprenant 8 différentes bobines alliées à des entrefers, le champ pouvait être appliqué dans toutes les directions de l'espace (cf fig. 3.7 a) et b)),

5. Par exemple, nous avons remarqué que la couche de diélectrique déposée sur l'échantillon dans le cas de l'application d'un champ électrique (cf chapitre 5) était réfléchi de la même manière en lumière bleue et rouge, alors que la contre électrode d'*ITO* n'était sondable qu'en lumière verte et rouge (apparaît très foncée en bleue), avec une meilleure intensité en rouge. Ce sera donc la couleur de diode choisie pour la plupart de nos images.

et jusqu'à une valeur de  $100mT$  selon l'écartement des pôles magnétiques (entrefers). Le champ perpendiculaire est très homogène en position (homogénéité meilleur que 1% sur une surface d'environ  $5mm^2$  [4]).

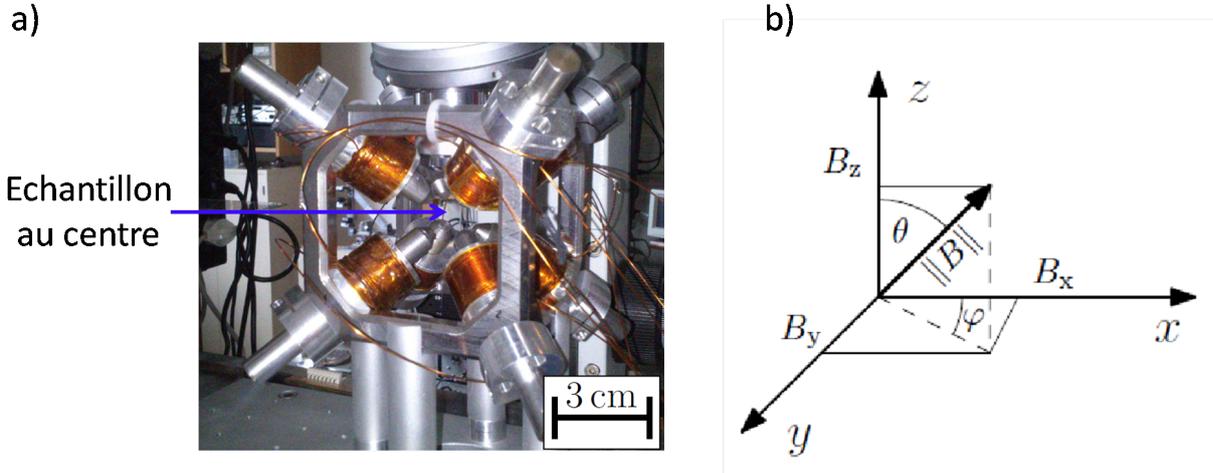


FIGURE 3.7: a) Photographie du système de bobines+pôles dit "Kube" permettant d'obtenir un champ magnétique dans toutes les directions de l'espace.

b) Précision des angles liés aux différentes composantes du champ magnétique appliqué dans le système.

Figure reportée de [4].

Des mesures très précises en position (pas de  $20\mu m$ ) ont donc été possibles grâce à ce programme de scan. Les cycles seront présentés au chapitre 4 et un exemple de traitement est donné ci-dessous.

Les mesures de cycles Kerr avec un champ parallèle à la surface de l'échantillon ont toutefois été réalisées sur un autre appareil possédant une bobine refroidie à l'eau et qui permet d'appliquer des champs planaires plus forts ( $600 - 700mT$ ). Les cycles sont représentés au chapitre 5 et leur acquisition sera précisée dans les paragraphes suivants.

L'utilisation de ces microscopes à effet Kerr nous ont aussi permis de déterminer, grâce à l'imagerie, les structures en domaines magnétiques de nos échantillons. Ces images seront présentées au chapitre 5.

### Exemple de cycles en champ perpendiculaire

Un exemple de cycle enregistré avec un champ perpendiculaire est donné en figure 3.8. L'extraction des valeurs de champs coercitifs à partir des cycles mesurés a été rendue possible grâce à un programme de traitement semi-automatique que j'ai réalisé au cours de ma thèse. Il consiste, après avoir centré autour de 0 et normalisé le signal, à retirer la pente obtenue à forts champs (due à l'effet Faraday, qui ne nous intéresse pas ici), afin de redresser le cycle (cf fig. 3.8 a)) pour ensuite réaliser une interpolation linéaire des points les plus proches de  $M_z \text{ normalisee} = 0$  (cf fig. 3.8 b)). Le programme déduit ainsi une valeur de champ coercitif positive, négative ainsi qu'une valeur moyenne pour chacune des positions mesurées lors du scan de l'échantillon.

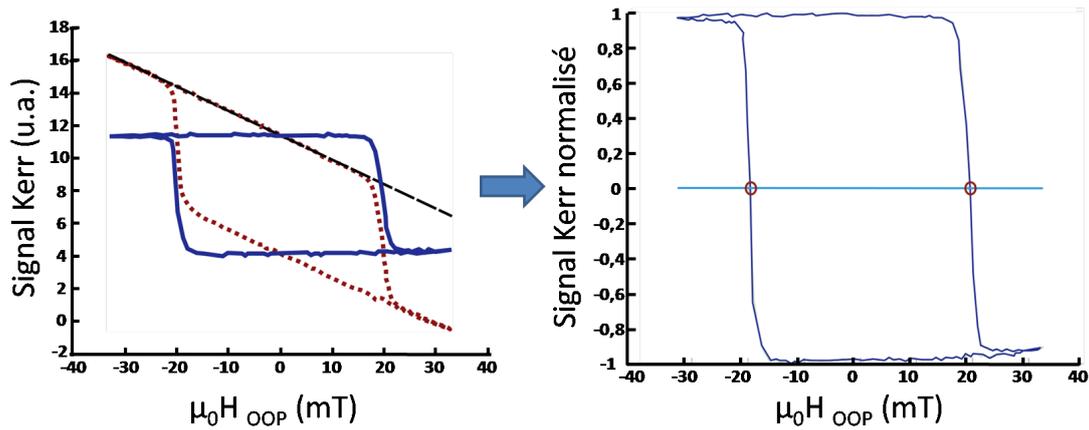


FIGURE 3.8: Exemple du traitement réalisé sur un cycle Kerr( $H_{OOP}$ ) obtenu en Kerr polaire. Le cycle rouge en pointillés représente le cycle brut et la droite noire en tirets et la droite d'ajustement linéaire à forts champs (20 – 30mT). Le cycle est ensuite centré en 0 pour permettre l'extraction précise de  $\mu_0 H_c$ . La normalisation du signal n'est pas indispensable dans le calcul de  $H_c$ , et était réalisée surtout pour comparer directement plusieurs cycles de valeurs de  $H_c$  différentes. Lors de la comparaison de l'intensité du signal Kerr, les cycles n'étaient pas normalisés après centrage.

### Exemple de cycles en champ planaire

Ensuite, de manière à compléter les mesures du champ d'anisotropie,  $\mu_0 H_a$ , réalisées par effet Hall extraordinaire (*EHE*) qui sera présenté dans les paragraphes suivants, et, en étant plus précis en position, nous avons réalisé le même type de mesure directement en Kerr polaire en appliquant un champ parallèle à la surface de l'échantillon. Le Kerr en configuration polaire est sensible à la composante perpendiculaire de l'aimantation et nous permet donc d'obtenir des cycles  $\propto M_z(H_{IP})$ , sans avoir à appliquer du courant au sein l'échantillon, contrairement aux mesures *EHE*. Ce type de mesure ne présente donc aucune préparation préalable pour l'échantillon et peut être réalisé en "pleine plaque". De plus le fait de n'appliquer aucun courant nous permet de ne pas être gênés par la propagation de domaines avec le courant qui pourrait avoir lieu dans certaines zones de l'échantillon (cf chapitre 4 pour la description des différentes zones) lors des mesures *EHE*, ce qui pourrait fausser l'extraction de  $H_a$ . Les fenêtres de sélection possibles pour l'enregistrement des cycles en fait aussi un atout par rapport aux mesures *EHE* car nous pouvons mesurer très finement en position (tous les 150 – 200 $\mu m$ ) l'aspect de ces cycles. Cependant, les champs magnétiques planaires maximaux qui peuvent être appliqués sont bien plus faibles quand dans les mesures *EHE*, nous ne sommes donc généralement pas en mesure de saturer complètement nos échantillons fortement anisotropes. Ce type de mesures peut donc s'appliquer surtout dans les zones de l'échantillon où l'anisotropie tendra à diminuer, nous détaillerons cela au chapitre 5.

Le type de cycle enregistré est très semblable aux cycles obtenus par les mesures *EHE*. Un exemple de cycles à traiter est présenté en annexe D et les méthodes d'extraction du champ d'anisotropie qui ont été utilisées au cours de la thèse y sont aussi décrites.

### 3.3.2 Mesure quantitative : magnétomètre VSM-SQUID (à échantillon vibrant)

Le magnétomètre *VSM – SQUID* a été l'unique technique de caractérisation employée capable de mesurer directement la valeur du moment magnétique. Les autres techniques étant des mesures indirectes, elles ne permettent pas de remonter à une valeur absolue de l'aimantation<sup>6</sup>.

Nous ferons d'abord une description découplée des principes de mesures classiques *VSM* et *SQUID*, puis nous décrirons l'appareil utilisé à l'institut qui couple ces deux types de mesures pour déduire le moment magnétique des échantillons.

#### 3.3.2.1 Principe de mesure

##### – Magnétomètre à échantillon vibrant : VSM

Un *VSM* permet de mesurer le moment magnétique d'un échantillon, en fonction du champ magnétique appliqué. La fixation de l'échantillon peut se faire dans les deux directions, ce qui rend possible la mesure de l'échantillon en champ magnétique planaire (*IP*), ou perpendiculaire (*OOP*).

L'échantillon est fixé sur une canne, qui subira une translation linéaire (oscillation) le long du système de détection de l'appareil (qui est composée d'un système de bobines de détection, montées en série-opposition). La direction d'oscillation du système "échantillon + canne" est représentée en figure 3.9. Ce mouvement se produit à une fréquence fixée pour la mesure. La variation de flux magnétique, induit par la vibration de l'échantillon, produira un courant dans les bobines de détection (voir représentation schématique de l'appareil en figure 3.9). Cette mesure de courant permet donc de revenir à la valeur du moment magnétique habituellement par une calibration avec un échantillon de moment connu.

La qualité du signal est généralement bonne dans ce type d'appareil et la sensibilité très forte ( $10^{-6} emu = 10^{-3} A.m^2$  dans notre cas).

L'inconvénient principal que l'on peut citer est le fait que la canne, le substrat, ainsi que le montage de mesure (l'échantillon peut être fixé sur un tube en quartz, ou bien sur une paille en plastique, à l'aide d'un film plastique) possèdent eux-aussi une contribution au signal total. Dans le cas de forts signaux magnétiques, ces contributions ne sont pas gênantes et peuvent être retirées de manière simple. En effet, le caractère diamagnétique ou paramagnétique du matériel utilisé se traduit par un signal linéaire en champ magnétique qui peut être facilement corrigé (cf paragraphe suivant pour le traitement de nos cycles).

Dans le cas de nos couches ultra-fines (cf chapitre 4 et 5 pour plus de précisions sur l'échantillon), le signal magnétique de l'échantillon était très faible, rendant difficile la distinction entre le signal magnétique, et le signal du système de montage. Les mesures ont toutefois été possibles car l'appareil utilisé consiste en un magnétomètre à échantillon vibrant, couplé à un système de détection des signaux de type *SQUID* (Superconducting Quantum Interferences Device). Ce système de détection sera décrit au paragraphe suivant et est capable d'augmenter la sensibilité de l'appareil de mesure, nous permettant de remonter aux valeurs de moments magnétiques.

##### – Système de détection très sensible : SQUID

Le *SQUID* sera donc utilisé comme capteur dans notre système de mesure, et nous parlons donc d'appareil de mesure de type *VSM – SQUID*. Le principe de détection est similaire à celui du *VSM* car la grandeur mesurée est une tension évoluant avec le courant induit

---

6. En exemple, la valeur de la résistance de Hall (qui sera décrite à la section suivante) dépend de nombreux paramètres autres que l'aimantation perpendiculaire, propres au matériau mesuré, de même que le signal Kerr

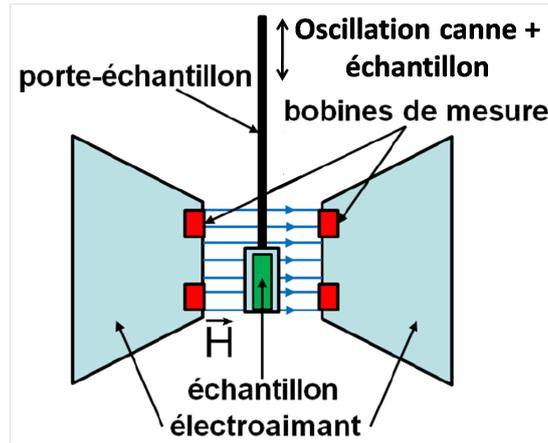


FIGURE 3.9: Schématisation du principe de mesure grâce à un magnétomètre à échantillon vibrant. Le force électromotrice ( $fem$ ) induite dans les bobines de détection correspond à la variation du flux magnétique :  $e = \frac{-d\phi}{dt}$ , induit par la vibration de l'échantillon à une fréquence donnée. Le champ magnétique appliqué par l'électroaimant étant constant dans le temps, il n'induirait pas de  $fem$  supplémentaire. Figure adaptée de [88].

dans le système de détection par la variation du flux magnétique, et entrant dans le *SQUID*. Seulement, le détecteur n'est pas une simple bobine dans ce cas, mais se compose de deux jonctions Josephson liées au sein d'un anneau de matériau supraconducteur (cf représentation schématique en figure 3.10 a)).

Un matériau supraconducteur possède une résistance *DC* nulle en dessous d'une certaine température  $T_c$  (et d'un certain courant critique  $I_{c,1}$ ). Ce type de matériau possède la propriété particulière d'expulser un champ magnétique extérieur pour  $I < I_c$ . Dans le cas d'une boucle de surface  $S$  (et d'inductance  $L$ ), le flux magnétique est quantifié comme :  $B \cdot S = n\phi_0$ , avec  $\phi_0$  un quantum de flux magnétique  $\phi_0 = h/2e = 2 \cdot 10^{-15} \text{ Wb} \approx 2,07 \cdot 10^{-11} \text{ T} \cdot \text{cm}^2$ .  $h$  est la constante de Planck,  $e$  la charge élémentaire et  $n$  un entier.

Lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué (soit un flux :  $\phi = \mu_0 H S$ ), un courant électrique  $I_{\text{écranage}}$  tel que  $\phi - L I_{\text{écranage}} = n\phi_0$  est induit dans le *SQUID*. Si ce champ magnétique dépasse (ou égale) la valeur d'un demi quantum de flux :  $H = n\phi_0/2\mu_0 S$ , le système laisse passer l'équivalent d'un quantum de flux, et le courant  $I_{\text{écranage}}$  est alors inversé<sup>7</sup>, puis diminue progressivement pour s'annuler à  $\phi = n\phi_0$  (cf fig. 3.10 c) et d)).

Pour un cas simple où un courant  $I_{\text{bias}}$  (très légèrement supérieur à  $2I_{c,2}$ ) est injecté dans l'anneau sans champ magnétique extérieur, se divisant ainsi en deux courants égaux ( $I_{\text{bias}}/2 \approx I_{c,2}$ ) dans chacune des branches de l'anneau (cf fig. 3.10 a)), la tension de base est quasiment nulle.

Une jonction Josephson, jonction tunnel séparant deux matériaux supraconducteurs, est présente dans chacune des branches de la boucle. Elles représentent les points "faibles" (contrôlés) de la boucle, car elles possèdent un courant critique plus faible que celui du matériau supraconducteur ( $I_{c,2} < I_{c,1}$ ).

L'ajout de la composante  $I_{\text{écranage}}$  sous l'application d'un champ magnétique (ou bien provenant des bobines de détection *VSM* dans notre cas, voir description de l'appareil utilisé plus loin dans ce paragraphe), rend le courant supérieur à  $I_c$  dans l'une des jonctions Josephson et une valeur de tension peut alors être mesurée aux bornes du *SQUID* car

7. Se met à circuler dans la branche droite s'il circulait dans la gauche (cf fig. 3.10 a))

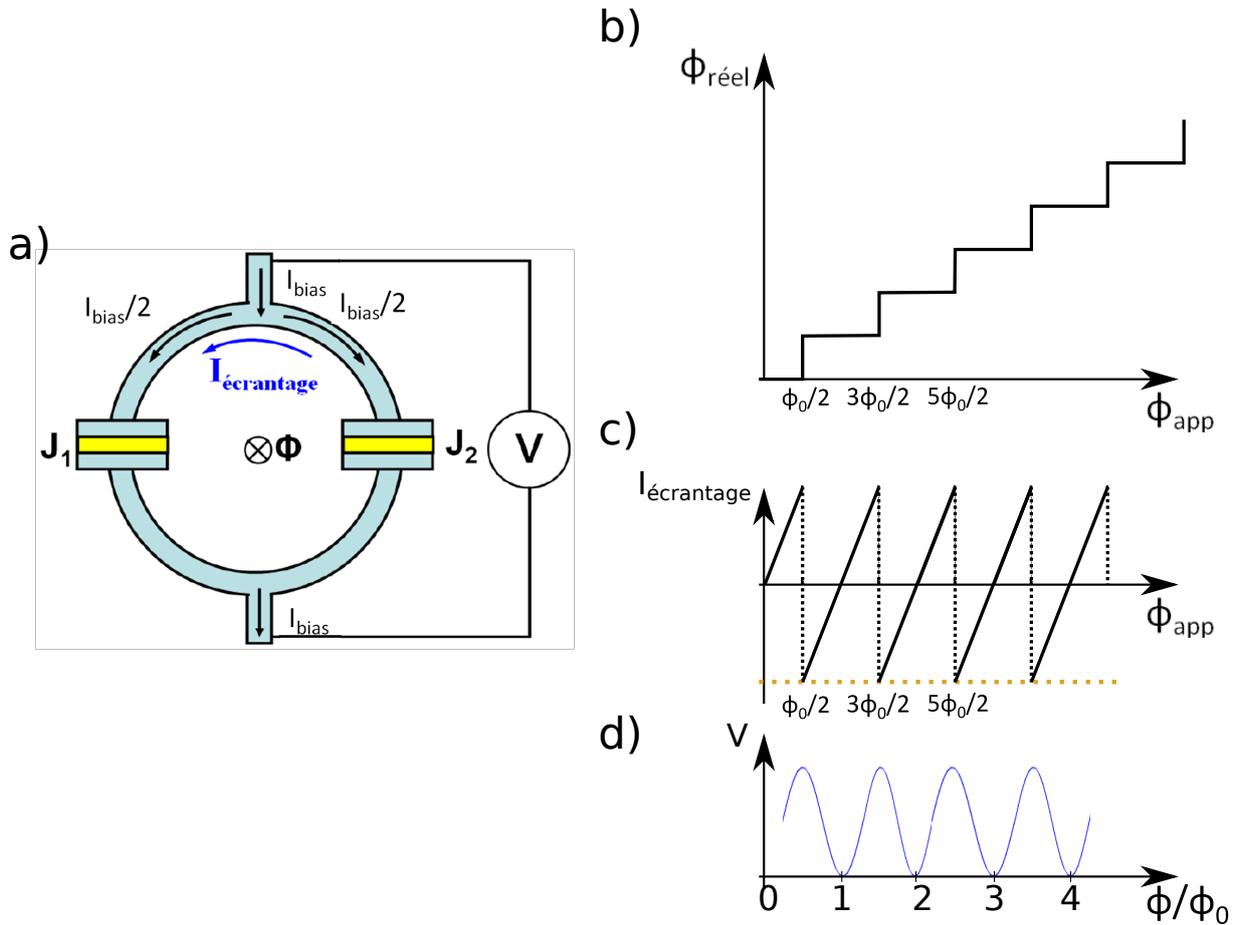


FIGURE 3.10: a) Schéma général d'une boucle *SQUID*. Un courant de bias est appliqué dans les deux branches de la boucle pour passer à travers les deux jonctions Josephson  $J_1$  et  $J_2$ . Figure adaptée de de [88].

b) Graphe illustrant le principe d'un *SQUID*. Le flux magnétique passant à l'intérieur de la boucle est quantifié.

c) Le courant induit dans la boucle supraconductrice croît jusqu'à son inversion lors du passage d'un demi-quantum du flux  $\phi_0$  et son annulation pour un multiple entier de  $\phi_0$ .

d) Tension mesurée aux bornes du *SQUID* en fonction du flux magnétique passant dans la boucle.

la jonction Josephson correspondante passe en état normal. La tension *SQUID* est alors périodique avec le flux magnétique, de période  $\phi_0$ . La variation du flux magnétique est alors déduite en dénombrant le nombre de périodes obtenues lors de la mesure (cf fig. 3.10 d)). C'est la valeur de cette tension qui permet de revenir au moment magnétique de l'échantillon.

Notre système de mesure *VSM – SQUID* est donc un montage de type *VSM*, possédant un capteur *SQUID* pour mesurer avec précision le courant induit dans les bobines de détection ( $I_{\text{écranage}}$ ). Il est schématisé en figure 3.11. Ses éléments principaux sont [4] :

1. Une bobine supraconductrice, capable de générer de forts champs magnétiques jusqu'à  $7T$  (seulement le champ généré est représenté sur le schéma en fig. 3.11),
2. Des bobines de détection en série-opposition (*VSM*), espacées de  $2cm$ ,
3. Un moteur de très grande précision ( $10\mu m$ ) pour déplacer l'échantillon de manière sinusoïdale (fréquence  $\omega$ ) au sein des bobines de détection,

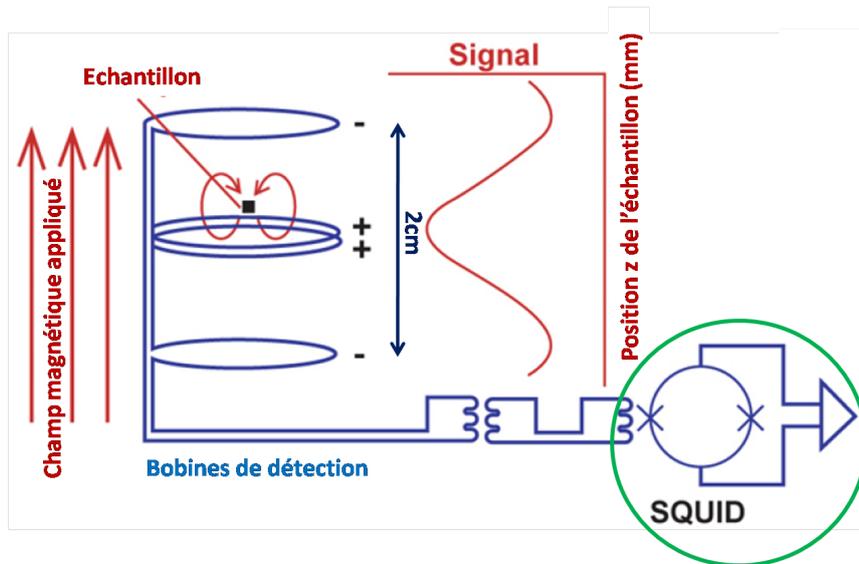


FIGURE 3.11: Représentation schématique du *VSM – SQUID* utilisé au cours de ma thèse. Le signal obtenu en fonction de la position de l'échantillon par rapport aux bobines de détection est précisé. Les bobines de détection sont reliées au système de détection très précis (*SQUID*). Figure adaptée de [4].

4. Un système de détection *SQUID* connecté par aux bobines de détection (encadré en vert en fig. 3.11),
5. Une enceinte isolant la chambre de mesure des champs magnétiques extérieurs.

L'hélium liquide utilisé pour refroidir la bobine supraconductrice source de champ magnétique, est aussi utile au refroidissement de la chambre de mesure. La gamme pouvant être balayée dans l'appareil est de 2 – 400K.

La première étape de préparation à la mesure est l'étape de centrage de l'échantillon au sein du système. Sa position doit être exactement au centre des deux bobines de détection. Pour ce faire, nous procédons à un scan en position en appliquant un très fort champ magnétique, ce qui permet d'utiliser le fort signal diamagnétique du substrat pour le centrage (signal de l'échantillon trop faible).

Ensuite, nous devons préciser que la boucle *SQUID* ne mesure pas directement le flux magnétique produit par l'échantillon en vibration, contrairement aux magnétomètres *SQUID* usuels décrits précédemment. Il est couplé aux bobines de détection, qui sont bien celles détectant les variations du flux magnétique de l'échantillon. Le courant induit dans les bobines de détection est principalement fonction de la position de l'échantillon lors de sa translation. Si l'on nomme  $\omega$  la fréquence de vibration de l'échantillon, le signal détecté par le système *SQUID* s'écrit [4] :  $V(t) = AB^2 \sin^2(\omega t)$ , que l'on peut aussi écrire en fonction de la position :  $V(z) = Az^2$ , avec  $A$  le préfacteur lié à la valeur du moment magnétique [4]. Le *SQUID* se composant d'un matériau supraconducteur, pour des valeurs  $I_{\text{écranage}} > I_{c,1}$ , sa caractéristique  $I(V)$  est très linéaire (on est alors en régime ohmique). La valeur de la tension mesurée est donc directement proportionnelle à la valeur du courant induit dans les bobines de détection, et donc à la variation du flux magnétique induit avec la vibration de l'échantillon. Nous remontons donc à la valeur du moment magnétique de l'échantillon <sup>8</sup>.

8. Pour plus de précisions sur la méthode de détection électronique, se référer à la section 2.3.3 en [4]

### 3.3.2.2 Exemple de cycles mesurés et précisions par rapport à notre système

**Traitement** La figure 3.12 donne un exemple de la technique utilisée pour extraire nos valeurs de  $M_s \cdot t_{Co}$  que nous avons reportées au chapitre 4. Le programme de traitement que j'ai réalisé au cours de ma thèse permet d'extraire de manière semi-automatique une valeur de moment négatif et positif (droite noire et rouge en figure 3.12) à champ nul, extrapolé à champ fort. Cela est rendu possible grâce à l'utilisation de deux fits linéaires à forts champs (gamme de  $600mT$  à  $1T$  en négatifs et positifs, donc plus de 20 fois supérieure aux valeurs de champs coercitifs extraites) puis par le calcul d'intersection avec l'axe des ordonnées. L'extrapolation se faisant à 0, nous avons choisi de ne pas retirer la pente due au montage dans le programme d'extraction, de manière à réduire au maximum les étapes lors du traitement des données. Nous déduisons, pour chaque position, deux valeurs de moment ainsi qu'à une valeur moyenne. Nous extrayons aussi les valeurs des pentes de chacun des fits (qui sont utiles pour vérifier que le montage ne vient pas altérer la mesure en température. En effet, la valeur de pente serait alors très variable entre chaque température. De plus, le signe de la pente permet d'avoir une idée quant à l'influence du montage par rapport à celle du substrat sur la mesure : le substrat de silicium apporte une pente négative en champ magnétique).

La variation des valeurs de ces pentes nous permet d'avoir une idée quant à la qualité du signal mesuré. Pour un même montage et un même échantillon, cette pente devrait rester globalement constante malgré la variation de la température de mesure. Nous remarquons cependant que cette pente, généralement négative pour des mesures sur substrat de  $Si$ <sup>9</sup> a été positive pour toutes nos séries de mesures. Cela est à nouveau le signe du très faible signal apporté par nos couches ultra-fines, en effet, le signal substrat+couche n'est pas suffisant pour venir compenser le signal à pente positive apporté par le montage en lui-même<sup>10</sup>.

Pour revenir avec précision à la valeur de  $M_s \cdot t$  à partir de la valeur mesurée de moment magnétique de volume, une des propriétés du Kerr Kube (décrit à la section précédente) a été utilisée. Elle permet de mesurer avec précision l'aire d'un élément, exprimée en  $mm^2$ . Nous obtenons ainsi :  $moment(A.m^2) = 10^{-3} \cdot moment(emu)$  et puis  $M \cdot t(A) = moment(A.m^2) / (Surface(m^2))$ .

Les mesures réalisées à température ambiante se sont montrées être très reproductibles au fil du temps. Certains morceaux ont été mesurés durant une année complète et le saut à champ magnétique nul coïncidait bien.

Étant dans le cas de couches ultra-fines, la difficulté à laquelle nous nous sommes confrontés a été la qualité des signaux obtenus. Notre film en lui-même n'apporte que très peu de signal (en particulier par rapport au signal diamagnétique du substrat), malgré la bonne résolution du  $VSM - SQUID$  utilisé, et le montage de mesure peut venir altérer l'extraction des résultats. Il a été donc indispensable de faire un travail de statistique. Nous avons donc mesuré chacun des morceaux à plusieurs reprises pour pouvoir moyenniser nos résultats et en déduire une erreur statistique. Nous avons ainsi pu déduire une erreur de mesure de 7% des signaux de  $M_s \cdot t$ . Nous rappellerons cette erreur de mesure en annexe J, et nous la prendrons en compte lors des tracés ou des calculs d'erreurs. Une erreur systématique pourrait aussi s'exprimer en fonction de la taille de l'échantillon, mais nous considérerons ici que l'erreur la plus importante est l'erreur statistique mentionnée précédemment, qui est due à la faiblesse de nos signaux.

---

9. Car le signal total est dominé par le caractère diamagnétique du  $Si$ , bien plus épais que notre tri-couche magnétique.

10. Le signe de cette pente a été vérifié expérimentalement par des mesures de montage seul

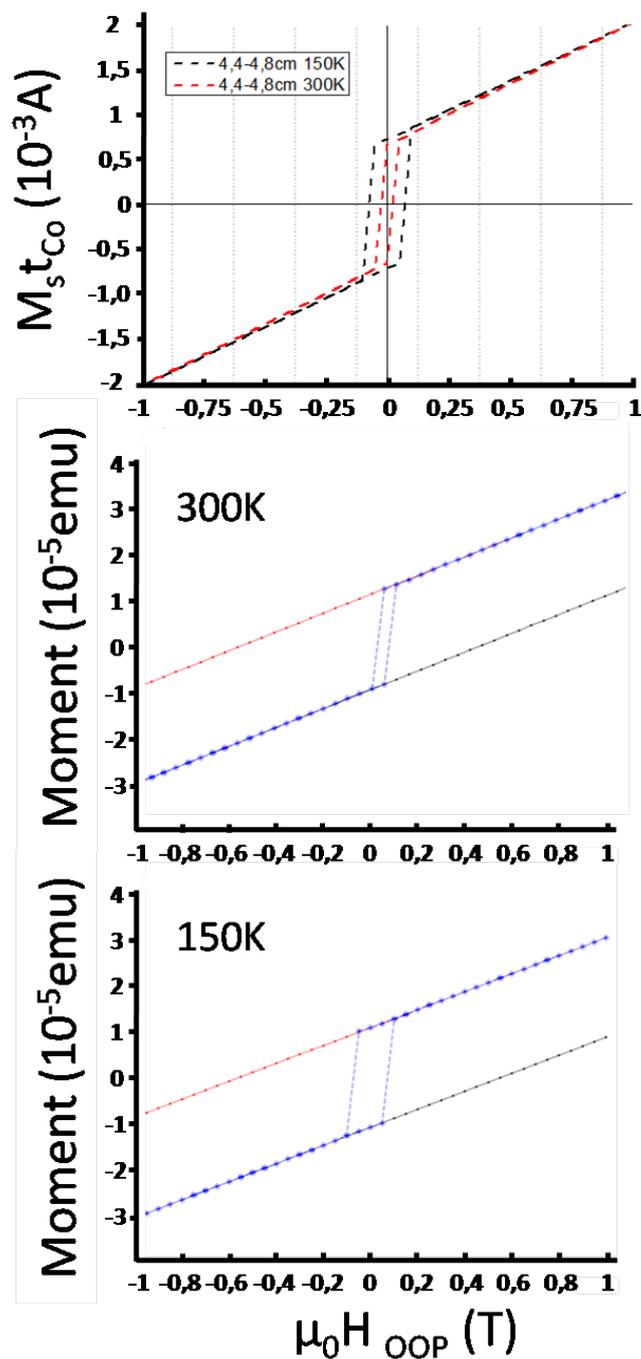


FIGURE 3.12: Traitement des cycles *VSM – SQUID* avec fits linéaires à forts champs et extrapolation du signal à champ nul pour deux températures différentes (150 et 300K) pour un même morceau d'échantillon. Nous remarquons que le coercitif est deux fois plus fort à basse température, et que le moment magnétique est lui aussi plus important. *Pour rappel* :  $1 A.m^2 = 10^{-3} emu$ .

### 3.3.3 Mesure de magnéto-transport

Les mesures de magnéto-transport sont un terme générique qui englobe tout type de mesure de résistance électrique en présence d'un champ magnétique appliqué. Nous décrirons ici les mesures magnéto-transport d'effet Hall extraordinaire (*EHE*) que j'ai utilisées lors de ma thèse car elles présentent la particularité de pouvoir sonder la composante perpendiculaire de l'aimantation.

#### Effet Hall extraordinaire - Principe

L'effet Hall ordinaire est une manifestation de la force de Lorentz sur les électrons. La présence d'un champ magnétique a la propriété de dévier un courant d'électrons dans la direction perpendiculaire à ce courant, ainsi qu'au champ appliqué. En résulte une accumulation de charge et donc une valeur de tension de Hall  $V_H$  peut alors être mesurée (cf schéma explicatif en figure 3.13). Dans le cas de matériaux magnétiques, une composante supplémentaire s'ajoute à l'expression de  $V_H$ . En effet, le courant d'électrons est à la fois dévié par le champ magnétique appliqué, mais aussi par les composantes de l'aimantation du système. La résistance de Hall s'exprime alors [4] :

$$R_H = \mu_0 H_{IP} R_0 \cos(\phi) + M \cos(\theta) R_E = \mu_0 H_z R_0 + M_z R_E \quad (3.1)$$

avec  $\mu_0 H_{IP}$  l'induction magnétique extérieure appliquée, globalement dans le plan de l'échantillon et  $\mu_0 H_z$  sa composante appliquée perpendiculairement à la surface de l'échantillon ;  $M_z$  la composante perpendiculaire de l'aimantation (selon la direction  $z$ , représentée en jaune sur la figure 3.15) ;  $R_0$  est le coefficient de Hall ordinaire et  $R_E$  l'extraordinaire. Les angles  $\theta$  et  $\phi$  représente respectivement l'angle que fait l'aimantation avec la direction perpendiculaire (axe facile dans notre cas), et l'angle que fait le champ magnétique appliqué avec ce même axe. Ils sont représentés en encart de la figure 3.15.

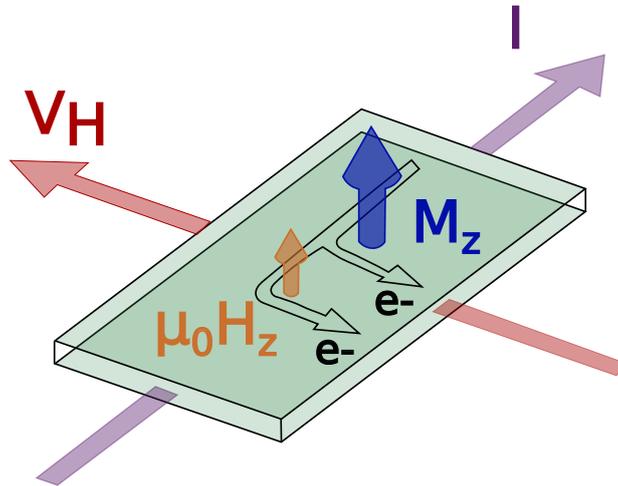


FIGURE 3.13: Schéma explicatif des composantes de l'effet Hall dans un matériau magnétique. Le courant d'électrons va être dévié à la fois par l'application d'un champ magnétique extérieur  $\mu_0 H_z$  et par la composante  $M_z$  de l'aimantation du système, entraînant une valeur de tension de Hall  $V_H$  transverse, non nulle.

Nous pouvons distinguer ces deux coefficients en gardant à l'esprit que  $R_0$  est lié à la force de Lorentz des électrons "au contact" du champ magnétique appliqué  $\mu_0 H_z$ , et que le coefficient  $R_E$  est lié au couplage spin-orbite au sein de la couche de *Co*. Il a été démontré que, dans le

cas de matériau ferromagnétique, le coefficient extraordinaire est bien plus important que l'ordinaire [4, 88]. La mesure de la tension de Hall sera donc considérée comme directement liée à la composante perpendiculaire de l'aimantation  $M_z$ <sup>11</sup>. Ces coefficients sont aussi très dépendants des couches sur et sous-jacentes à la couche magnétique, ainsi que de leur épaisseurs. Ces couches doivent être assez minces pour que le signal de Hall reste fort, sans quoi, une grande partie du courant appliqué ne passera pas par la couche magnétique.

Notons que nos conditions de mesures ne sont pas les conditions classiques. En effet, nous avons choisi d'appliquer un champ magnétique  $\mu_0 H_{IP}$  (globalement planaire, parallèle à la surface de l'échantillon), d'amplitude variable (cycle) pour suivre l'évolution de la composante perpendiculaire de l'aimantation  $M_z$ , jusqu'à sa saturation dans la direction parallèle à la surface de l'échantillon (planaire, axe difficile). La composante d'effet Hall normale attendue dans ce type de mesure est donc quasi inexistante et n'est due qu'au faible décalage du champ planaire appliqué d'avec l'axe difficile ( $\pi/2 - \phi$ ), induisant une faible composante  $\mu_0 H_z$  de champ magnétique appliqué perpendiculairement à la surface de la couche.

Ces mesures *EHE* peuvent être réalisées à température ambiante, et aussi à froid. De manière à pousser l'étude en température, nous avons donc réalisé nos mesures au sein d'un cryostat. L'utilisation de cet appareil a aussi permis d'accéder à de fortes valeurs de champ magnétique appliqué.

## Description du cryostat

Les mesures de magnéto-transport ont été réalisées dans un cryostat sous vide et refroidi par de l'hélium. De forts champs magnétiques y sont applicables car il contient une bobine supraconductrice pouvant délivrer des champs dans la gamme  $\pm 5T$ , avec une vitesse de rampe maximale de  $0,5T/min$ . La gamme de température de mesure est de  $4 - 310K$ . Des mesures en champ magnétique parallèle et perpendiculaire sont possibles. Lors du remplacement d'une sonde de température, nous avons pu photographier l'appareil dans son ensemble et l'avons représenté, accompagné d'un schéma explicatif, en figure 3.14.

La principale isolation du système avec l'extérieur se fait grâce à l'enceinte (visible en bleu-vert sur la figure 3.14), maintenue sous un vide primaire. Cette isolation est thermique et permet de ne pas vaporiser l'hélium trop rapidement. Elle permet aussi de conserver la température choisie à l'intérieur de l'enceinte.

Quatre sondes de température sont placées à différents niveaux de hauteur à l'intérieur de cette enceinte, et permettent de contrôler le remplissage en hélium liquide. Le niveau le plus bas contrôle la température de la bobine et vérifie que celle-ci baigne bien dans l'hélium<sup>12</sup>, le niveau juste supérieur est celui qui contrôle le niveau minimal (niveau *He* sécurité), puis deux niveaux *He* bas et *He* haut définissent globalement la hauteur où doit se trouver le niveau d'hélium pour pouvoir lancer une mesure.

L'espace échantillon est lui-même isolé du bain d'hélium et est maintenu sous vide grâce à une pompe à diffusion. Cet espace entier est appelé anti-cryostat. Le remplissage en hélium de cet espace se fait grâce à un système de pompage situé à l'intérieur de cette enceinte (pompe hélium, précisée sur la figure 3.14) et d'une extrémité poreuse, située au plus bas de l'anti-cryostat et qui est alliée à un système de chauffage (cf fig. 3.14). Le pompage de cet espace permet à l'hélium

11. Le coefficient  $R_0$  se manifestant par un signal linéaire en champ magnétique et facilement rétractable des mesures pour les métaux

12. Avant de pouvoir lui appliquer de fortes valeurs de courant (un champ magnétique de  $1T$  correspondant à l'application d'un courant de  $\approx 10A$ )

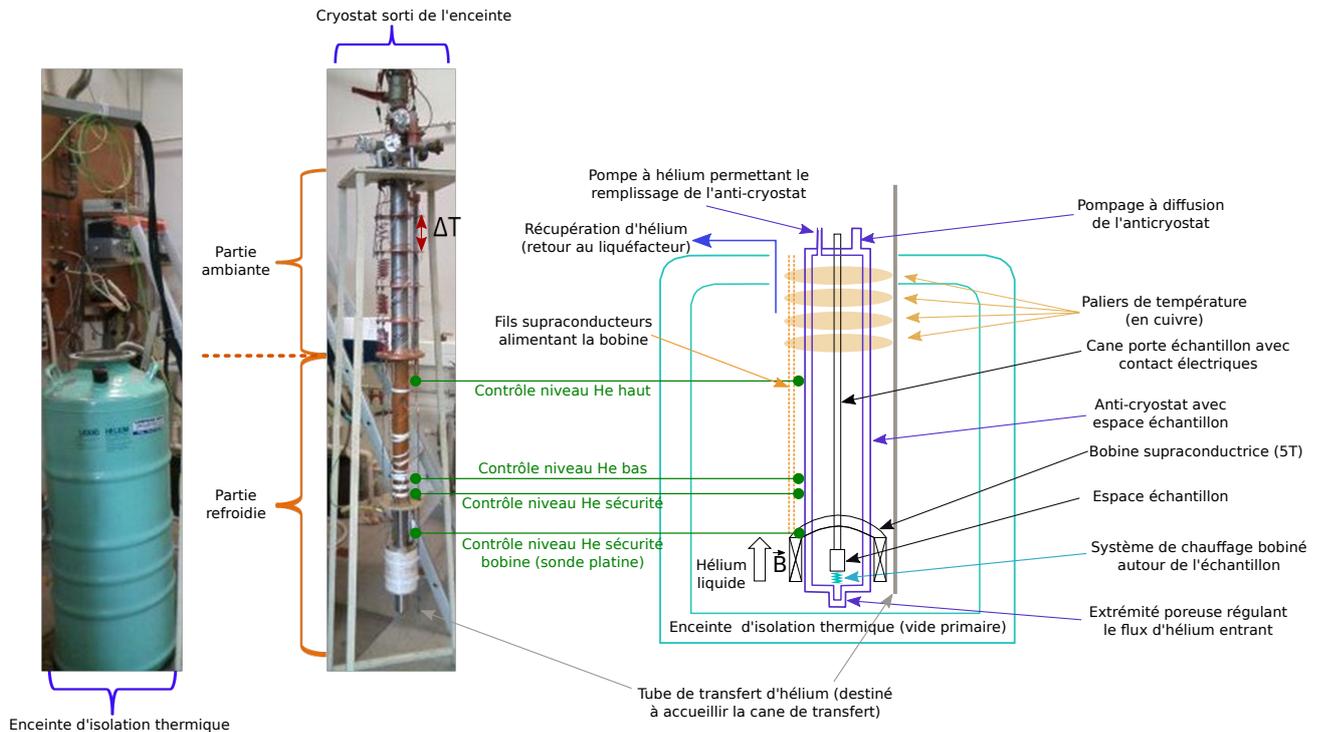


FIGURE 3.14: Photographie du cryostat utilisé et schéma complet du principe de fonctionnement. Les différents composants sont définis dans le texte. Les niveaux permettant de connaître le niveau de remplissage d'hélium sont spécifiés sur le schéma ainsi que sur la photo.

gazeux froid de circuler entre l'espace de stockage d'hélium liquide et l'espace échantillon, on parle alors de cryostat à flux d'hélium. L'extrémité poreuse permet de réguler le flux d'hélium entrant.

L'échantillon est fixé sur une cane de mesure, introduite dans l'anti-cryostat et qui possède toutes les connexions électriques nécessaires à la mesure. Un système de chauffage par impédance est localisé proche de l'extrémité poreuse d'entrée de  $He$  gazeux, et est bobiné autour du porte échantillon. Il ajuste la température de l'échantillon pour atteindre la température de consigne de mesure. La température de l'échantillon est elle aussi mesurée en continu grâce à une sonde de température <sup>13</sup>.

Nous allons maintenant présenter des exemples de cycles mesurés en température au sein de ce cryostat, sous un champ magnétique appliqué globalement parallèlement à la surface de l'échantillon ( $\mu_0 H_{IP}$  qui possède un léger angle de décalage avec la direction planaire).

### Effet Hall extraordinaire en température - Exemple de cycles mesurés

Les mesures  $EHE$  ont été réalisées à l'intérieur du cryostat. Elles ont été utiles pour déterminer le champ d'anisotropie de notre échantillon, donc le champ permettant de saturer l'aimantation de la couche dans sa direction difficile <sup>14</sup>. Pour cela, des motifs de croix de Hall ont été obtenus par photolithographie, puis par gravure sur nos échantillons (cf section précédente pour la description). Ces motifs et leurs dimensions sont représentés en figure 3.15. La première croix visible sur la figure permet de mesurer la valeur de la tension de Hall  $V_H$  et la seconde est juste

13. Sonde platine

14. Planaire dans notre cas

présente pour permettre de prendre un deuxième contact pour le passage du courant. La phase de micro-soudure (se faisant directement sur la surface d'alumine) étant délicate, cette deuxième croix nous donne deux possibilités de connexion pour le courant.

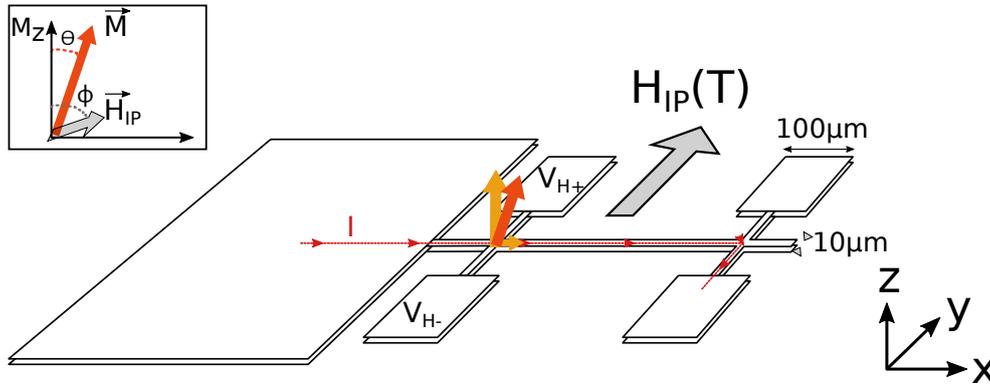


FIGURE 3.15: Motifs réalisés par gravure pour la définition de croix de Hall, utiles aux mesures *EHE*. La direction du champ (planaire) appliqué durant la mesure est spécifié, ainsi que la ligne où est appliqué le courant et la ligne où est mesurée la tension de Hall  $V_H$ . Les contacts pour l'application du courant  $I$  et la mesure de la tension ont été réalisés par micro-soudure avec un fil d'aluminium. L'aimantation perpendiculaire se couche petit à petit dans le plan de l'échantillon sous l'application du champ magnétique. Les angles  $\theta$  et  $\phi$  entre l'aimantation et l'axe facile, ainsi qu'entre le champ appliqué et l'axe facile sont précisés en encart de la figure. Ces mêmes angles ont été présentés au chapitre 1, en section 1.4.3.2.

Ces mesures *EHE* sont sensibles à la composante perpendiculaire de l'aimantation. Lorsqu'un courant  $I$  est appliqué dans la direction parallèle à piste, selon la direction  $x$  (cf figure 3.15), une tension de Hall,  $V_H$ , pourra être mesurée dans la direction planaire transverse, selon la direction  $y$  en figure 3.15. La définition de motifs perpendiculaire grâce à la photolithographie est donc très utile, car aucune composante longitudinale ne viendra s'ajouter au signal total. La tension mesurée sera directement la tension de Hall. Nous pouvons aussi éliminer les effets potentiels de magnétorésistance anisotrope (*AMR*) car toutes nos mesures ont été réalisées avec un champ magnétique appliqué perpendiculairement à la direction du courant  $I$ <sup>15</sup>.

Le type de cycle obtenu  $V_H \propto R_H \propto M_z(H_{IP})$  est représenté en figure 3.16 a) et b) et la détermination du champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a = 2K_{eff}/M_s$  se fait en utilisant le modèle de renversement de type Stoner-Wholfart décrit au chapitre 1, ou bien en déduisant à partir de cette mesure les cycles  $M_x(H_{IP})$  et en réalisant l'intégration de cette courbe (cf annexe D).

Comme décrit au chapitre 1 et rappelé en annexe D, le modèle de Stoner-Wholfart (*SW*) permet de reproduire la rotation de l'aimantation dans la direction de l'axe difficile, en jouant sur la valeur du champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a = 2K_{eff}/M_s$ . Ceci, en minimisant l'énergie par unité de volume du système :  $E = \mu_0 H_a / 2 \cdot \sin^2(\theta) - \mu_0 H_{IP} \cdot \cos(\theta - \phi)$ , avec  $\theta$  l'angle entre la direction de l'aimantation et de l'axe facile d'anisotropie. Et  $\phi$ , celui entre cet axe facile et la direction du champ magnétique planaire appliqué lors du cycles  $\mu_0 H_{IP}$ . Ces angles ont été précisés dans le paragraphe précédent et sont rappelés en encart de la figure 3.15.

15. Nous avons testé plusieurs fois l'influence de la direction du champ magnétique par rapport au courant et n'avons pas trouvé de différence significative pour la valeur du champ d'anisotropie extraite

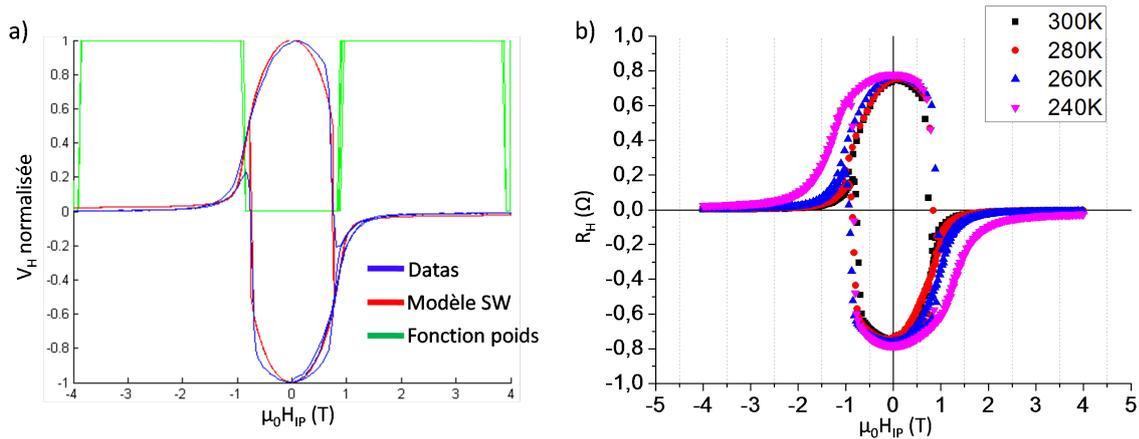


FIGURE 3.16: Exemples de cycles  $V_H(\mu_0 H_{IP})$  et  $R_H(\mu_0 H_{IP})$  obtenus grâce aux mesures *EHE* sur un échantillon à anisotropie perpendiculaire.

a) Tension de Hall normalisée et représentée avec l’ajustement réalisé grâce au modèle de renversement de type Stoner-Wholfart (en rouge). La fonction poids (en vert) a été ajoutée au programme réalisé au cours de ma thèse pour le travail de fit et elle vient définir les zone à prendre en compte pour le fit. La partie centrale du cycle sujette au renversement de l’aimantation et à la valeur du champ coercitif n’était donc pas prise en compte pour nos fits (fonction poids =0).

b) Exemple de mesures de résistances de Hall (la valeur du courant *DC* appliquée étant de  $1mA$ ) pour différentes températures sur une même croix de Hall.

Ces mesures ont l’avantage d’avoir été réalisées à fort champ, elles constituent donc les mesures les plus précises que nous pouvons obtenir pour déduire  $\mu_0 H_a$  car nous sommes certains d’avoir atteint la saturation de l’aimantation dans le plan de l’échantillon et notre travail de fit de type Stoner-Wholfart peut alors être réalisé de manière précise, et en utilisant une valeur précise pour l’angle de décalage  $\phi$ . Nous avons aussi pu nous concentrer sur une étude en température. En effet, au cours de ma thèse, j’ai réalisé ces mesures d’effet Hall extraordinaire pour des températures comprises entre  $240$  et  $300K$  (cf fig. 3.16 b) et chapitre 4) pour vérifier l’influence de la température de mesure par rapport à la température de Curie de nos échantillons.

Nous avons donc décrit avec précisions les techniques et les méthodes de caractérisation utilisées, nous allons maintenant montrer les principales propriétés magnétiques de nos échantillons grâce à l’utilisation de toutes ces différentes techniques.



# Chapitre 4

## Caractérisation magnétique de films ultraminces de $Pt/Co/AlO_x$

Comme il a été mentionné au chapitre 1, la variation du taux d'oxydation à sa surface présente un fort impact sur les propriétés magnétiques d'un matériau métallique, tout particulièrement dans le cas d'une tricouche  $HM$ (métal lourd)/ $FM$ (ferromagnétique)/ $Ox$  (oxyde).

Réduire les dimensions est un autre facteur venant à faire varier les propriétés magnétiques d'un matériau. L'aimantation  $M$  et la température de Curie  $T_c$  sont modifiées lorsque l'épaisseur d'un matériau diminue fortement. Ainsi, les couches ultrafines sont les objets d'études poussées depuis plusieurs années en vue des applications pour lesquelles la réduction des dimensions des matériaux utilisés est inévitable.

Au cours de ce chapitre, nous décrirons quel type de tricouche nous avons utilisé de manière à pouvoir maximiser nos effets de champ électrique. Nous déterminerons les grandeurs utiles, telles que le champ coercitif  $H_c$ , le champ d'anisotropie  $H_a$ , la  $T_c$  et l'aimantation à saturation ( $1T$ )  $M_s$  et à rémanence ( $\approx 0T$ )  $M_r$ , pour lesquelles nous nous attendons à avoir des effets remarquables en champ électrique.

### 4.1 Utilisation et intérêts d'une structure avec gradient d'épaisseur

Comme mentionné au chapitre 1, les échantillons utilisés au cours de cette thèse sont des tricouches composées d'un métal lourd, dans notre cas le platine ( $Pt$ ), avec au-dessus une couche mince de matériau ferromagnétique, dans notre cas le cobalt ( $Co$ ), et enfin une couche supérieure d'oxyde, ici de l'alumine ( $Al_2O_3$ ), et déposées sous vide par le système de pulvérisation cathodique mentionné au chapitre 3.

Après le dépôt de  $Pt$  et de  $Co$  "on-axis" (cf chapitre 3), une couche d'aluminium est déposée "off-axis". Elle est ensuite oxydée par un plasma d'oxygène. Nous obtenons ainsi un échantillon de type coin présentant un gradient d'oxydation à l'interface supérieure, et avec des épaisseurs telles que :  $Pt(3nm)/Co(0, 6nm)/Al(0, 76 - 1, 76nm) + O_2 plasma$  (ce qui correspond à une pente de  $0, 01nm/mm$ , cf figure 4.1 a). L'alumine ne présentant pas une forte propriété hydrophile, elle protégera le  $Co$  de l'oxydation naturelle. De plus, aucun recuit n'a été réalisé sur ces couches, donc l'interface est telle que déposée à  $300K$ , et le mélange entre les différentes couches n'est rendu possible que lors du dépôt même (ce qui est généralement assez long à température

ambiante).

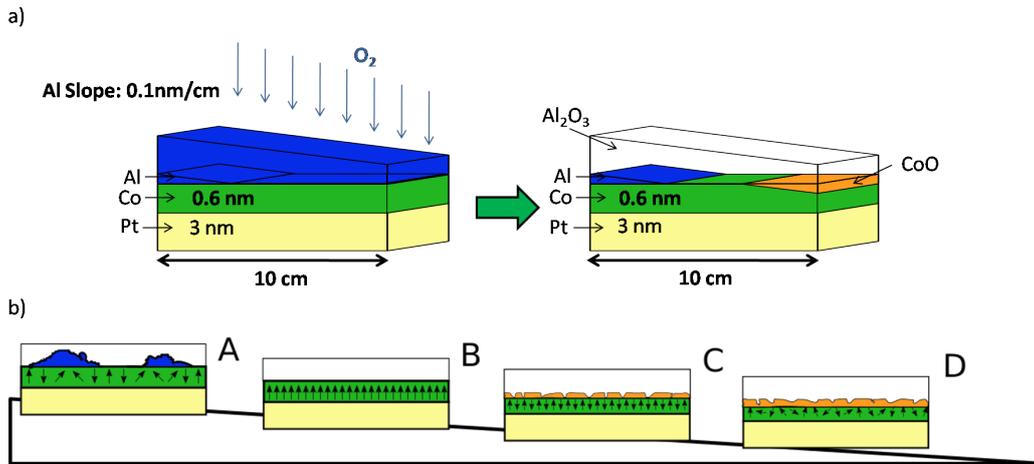


FIGURE 4.1: a) Tricouche utilisée et ses différents degrés d'oxydation.

b) Différentes configurations magnétiques existant le long du gradient d'oxydation.

Cet échantillon en coin est un bon outil pour ajuster les propriétés magnétiques de manière continue sur un seul et même échantillon. Grâce à cette pente douce d'aluminium, nous avons la possibilité de contrôler le degré d'oxydation du *Co* à l'échelle nanométrique. L'étude de ce type de système en coin, pour des épaisseurs de *Co* plus fortes, avait déjà permis de mettre en évidence différentes zones le long de l'échantillon telle que la transition entre la zone d'orientation planaire et la zone d'orientation perpendiculaire [4]. Au cours de ma thèse, j'ai été plus attentive aux zones de très faibles épaisseurs donc le type de transition est alors plutôt une transition entre un état ferromagnétique et un état paramagnétique à très faibles épaisseurs d'aluminium (donc pour un cobalt partiellement oxydé). Nous pouvons nous représenter plusieurs zones le long de ce gradient d'épaisseur qui se répartissent comme suit (cf fig. 4.1 b) :

- A- Une zone considérée comme "sous-oxydée" pour laquelle l'aluminium n'a pas été complètement oxydé par le plasma. L'interface supérieure se compose alors de liens *Co* – *Al* et *Co* – *O*. L'épaisseur du *Co* restant faible (0,6 nm), l'orientation dominante pour l'aimantation est perpendiculaire. Les propriétés magnétiques sont alors variables très localement, et la structure adoptée est plutôt polydomaine.
- B- Ensuite nous trouvons une zone d'oxydation optimale pour laquelle tout l'aluminium est oxydé. Nous sommes ici dans une zone présentant une forte anisotropie perpendiculaire (*PMA*) menant à une structure de type domaine unique. Nous avons vu au chapitre 1 que cette zone avait été mise en évidence dans les travaux de Manchon et al. [18] (qui travaillaient avec des temps d'oxydation différents pour leurs échantillons).
- C- Nous sommes dans le cas de la zone "sur-oxydée" pour laquelle le processus d'oxydation gagne la couche de cobalt, et nous perdons donc en épaisseur de matériau ferromagnétique. La configuration qui en résulte est une organisation de type multi-domaines d'orientation perpendiculaire.
- D- Enfin, cette zone très oxydée, pour laquelle l'épaisseur de cobalt est très faible, ne possède plus d'ordre magnétique à température ambiante, et est considérée comme paramagnétique.

Il est important de noter, que cette répartition en différentes zones nous permet d'imaginer l'évolution globale de la structure magnétique le long de l'échantillon, mais que leur répartition le

long de l'échantillon n'est pas forcément régulière. Les transitions entre ces différentes régions peuvent se faire de manière plus ou moins rapide le long de l'échantillon.

Cette structure est la base des échantillons étudiés durant cette thèse. Il est donc primordial de bien comprendre l'évolution des différentes propriétés magnétiques du cobalt de manière à pouvoir se focaliser sur les zones présentant de fortes variations de ces grandeurs en vue d'y étudier l'impact du champ électrique.

## 4.2 Modification des propriétés magnétiques le long du gradient d'oxydation - caractérisation régulière de l'échantillon en coin

Cette partie sera consacrée à la caractérisation régulière de l'échantillon, tout au long de ce gradient d'oxydation, en utilisant les techniques présentées au chapitre précédent. Une première caractérisation globale sera faite en imagerie Kerr pour se situer par rapport aux différentes zones listées précédemment. Puis un travail de caractérisation fine permettra de déduire les variations de  $H_c$ ,  $H_a$ ,  $M$  et  $T_c$  au sein de cette tricouche (ces paramètres ont tous été décrits au chapitre 1).

### 4.2.1 Cycles réguliers en Kerr polaire avec champ magnétique perpendiculaire appliqué

Ce premier type de mesure est réalisé grâce à un microscope à effet Kerr en configuration polaire. Le champ appliqué est alors perpendiculaire à la surface de l'échantillon et nous avons ainsi accès aux courbes  $M_z(H_{OOP})$  de notre couche. Nous avons donc mesuré à intervalles réguliers cette composante perpendiculaire d'aimantation,  $M_z$ , le long de l'échantillon. Ce travail de caractérisation est réalisé de manière systématique car il nous permet de manière assez rapide d'avoir une première idée quant aux propriétés magnétiques des différentes zones décrites précédemment.

La figure 4.2 montre un exemple de scan réalisé par pas de  $500\mu m$  sur un échantillon pleine plaque. En partant de la zone avec une plus fine épaisseur de  $Al$ , donc une plus fine épaisseur de  $Co$  non oxydé (cf haut de fig. 4.2), nous pouvons remarquer que le champ coercitif, tout d'abord nul, croît de manière continue jusqu'à atteindre une valeur maximum de l'ordre de  $12mT$  avant de décroître dans la zone "sous-oxydée".

Nous pouvons noter que l'allure des cycles diffère selon la zone de transition abordée (sur ou sous-oxydation). Alors que les cycles se resserrent jusqu'à atteindre une valeur de  $\mu_0 H_c$  nulle du côté sur-oxydé, à l'approche de la zone de sous-oxydation, les cycles d'hystérèse se courbent (cf fig. 4.2 c pour la position  $\approx 49mm$ ). Cet arrondissement du cycle est un témoin de l'existence d'une forte distribution de valeurs de champs coercitifs. On observe une très forte densité de nucléation, liée à l'inhomogénéité de l'interface (mélange de liaisons  $Co - Al$  et  $Co - O$ ). Une perte du signal Kerr est aussi remarquée. Cela pourrait être dû au fait que, dans cette zone, nous sommes en présence d'un mélange entre domaines perpendiculaires et domaines inclinés. Ceci est induit par la non-homogénéité de l'oxydation pour ces épaisseurs d'aluminium. Nous sommes donc dans une configuration de type multi-domaines avec un renversement de l'aimantation qui ne s'opère pas de manière homogène (ceci étant justifié par l'observation d'une grande densité de nucléation).

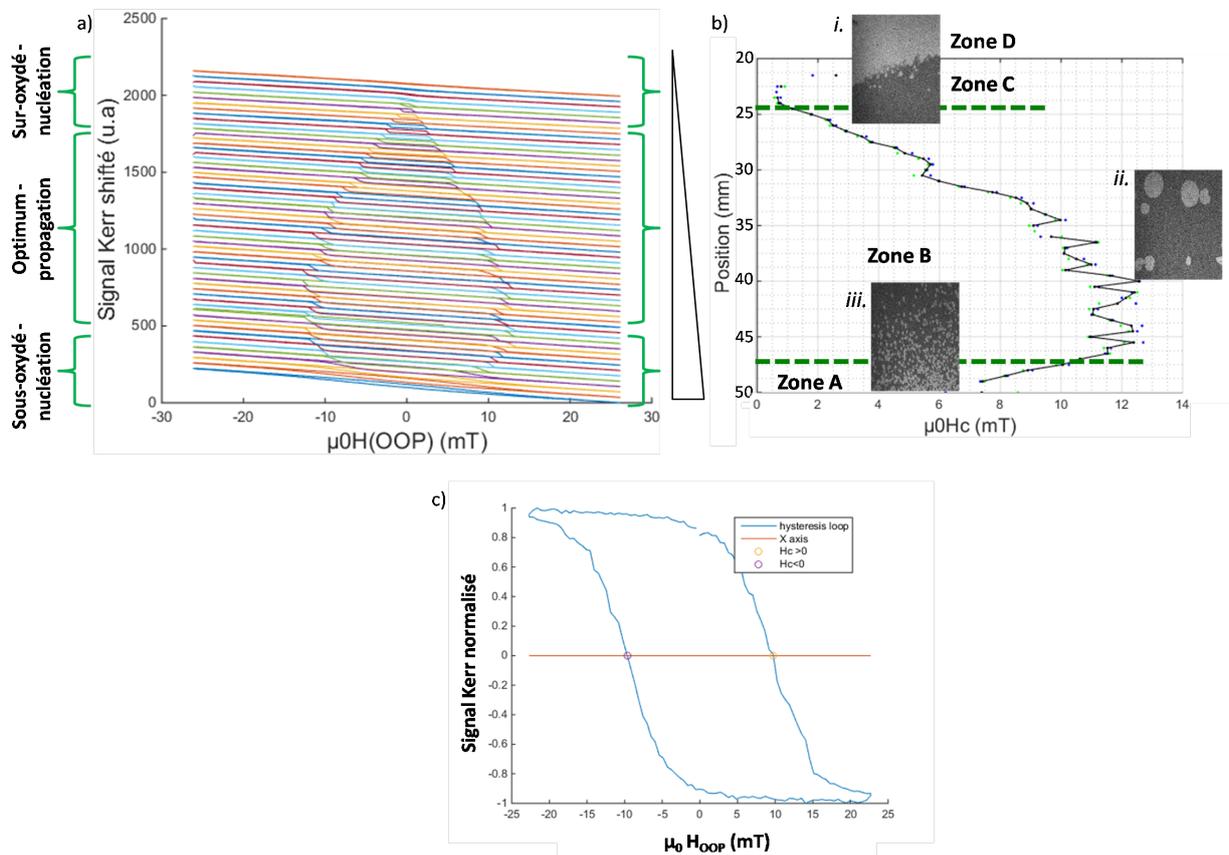


FIGURE 4.2: a) Cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  non normalisés, en Kerr polaire le long de l'échantillon pleine plaque - pas de  $500\mu m$  - Pour chacun des cycles, le signal Kerr est décalé d'un pas de 35 niveau de gris (u.a) en ordonnée pour faciliter la lecture. Un exemple de cycle seul traité a été donné au chapitre 3.

b) Valeurs de  $\mu_0 H_c$  (mT) extraites, en fonction de la position sur l'échantillon. Un rappel des zones énoncées en section 4.1 est présent. En encart Images Kerr soustraites, prises à la volée après saturation de l'échantillon dans la direction foncée (soit avec un champ appliqué négatif) et sous l'application d'un champ de 16mT. Elles représentent les différents processus de renversement d'aimantation sur un échantillon pleine plaque.

c) Zoom sur un cycle normalisé, courbé  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  dans la zone sous-oxydée (position  $\approx 49mm$ ).

Deux régimes de renversement de l'aimantation existent : le régime dominé par la nucléation et le régime dominé par la propagation de parois de domaines.

Le régime de nucléation s'opère dans les couches présentant de nombreux défauts ou inhomogénéités. Sous l'application d'un champ magnétique dépassant une certaine valeur critique, la barrière d'énergie utile à l'initiation du renversement est franchie. Des volumes d'activation, d'aimantation opposée à l'orientation de la couche, voient le jour. Dans le cas des zones décrites comme multi-domaines, ce procédé de renversement domine. Le renversement total de l'aimantation de ce type de couche est alors rendu possible par l'apparition d'une multitude de sites de nucléation et d'une légère propagation de leurs parois. Ce régime de nucléation est observé dans les zones de transition de notre échantillon et sont représentés en figure 4.2 b *i* et *iii*.

Ce procédé de nucléation simple ne fait qu'initier le renversement pour le deuxième régime, appelé régime de propagation. Le renversement total de l'aimantation de la couche est atteint grâce à la propagation des parois de domaines sous l'application d'un champ magnétique. Ces parois ont d'abord été créées par le processus de nucléation sur quelques sites. Le régime de propagation a été observé dans la zone centrale de notre échantillon, pour les fortes valeurs de  $\mu_0 H_c$  (cf fig. 4.2 b *ii*).

Grâce à ces différentes observations, nous avons été capables de faire le parallèle entre les différents comportements de  $\mu_0 H_c$  (ainsi que le régime de renversement observé) et les zones *A*, *B*, *C* et *D* décrites à la section précédente et en figure 4.1.

Nous avons fait figurer en figure 4.2 b les différentes zones décrites précédemment. Le passage de  $\mu_0 H_c$  d'une valeur nulle (à partir de la position 24mm) jusqu'à sa valeur maximale est donc considéré comme une transition de la zone *D* vers la zone *B*. La zone *B*, pour laquelle le coercitif est maximum et le régime de renversement est dominé par la propagation des parois, est considérée comme une zone de rotation uniforme (domaine unique). Enfin, la zone de "sous-oxydation" (pour des positions supérieures à 46mm) pour laquelle les valeurs de coercitifs sont dispersées et où le régime dominant est celui de nucléation, est apparentée à la zone *A* et présente une configuration de type multi-domaines.

Ce premier travail de caractérisation nous permet donc d'avoir une vue d'ensemble de notre échantillon et nous aide à déterminer les zones sur lesquelles nous voudrions nous focaliser. La variation de la coercivité étant plus forte dans les zones de transition, nous avons choisi ces régions pour les études sous champ électrique. Par la même occasion, nous étudierons le type de procédé de renversement de l'aimantation sous champ électrique .

#### 4.2.2 Evolution de $M_s \cdot t$ , $M_r \cdot t$ et de $T_c$

La particularité de ces échantillons est aussi une évolution, le long de ce gradient d'épaisseur, de paramètres magnétiques tels que l'aimantation à saturation  $M_s$ . Dans le cadre de ma thèse, deux mesures ont été utilisées en parallèle pour déduire l'évolution de cette quantité en fonction de la position sur l'échantillon.

D'une part, nous avons fait des mesures *VSM – SQUID*, qui donnent accès à  $M_s \cdot t_{Co}$ , mais qui sont alors des valeurs moyennes sur un échantillon de 1 à 2mm de large. D'autre part, les mesures en Kerr polaire, qui possèdent une très bonne résolution spatiale ( $\approx 1\mu m$ ), mais qui ne sont pas quantitatives. Elles permettent cependant d'évaluer la variation de  $M_s \cdot t$  le long du gradient d'épaisseur. La combinaison de ces deux techniques nous a permis d'avoir une idée assez précise de l'évolution de  $M_s$  le long de nos échantillons.

Il est important de préciser que nous avons dû raisonner en faisant une approximation sur la valeur de l'épaisseur de  $Co$ . Le gradient d'oxydation est obtenu par un gradient d' $Al$ , suivi d'une oxydation identique pour toutes les épaisseurs. Dans la zone sur-oxydée, il induit donc une oxydation partielle du  $Co$ , ce qui diminue son épaisseur  $t$ . Nous avons choisi d'admettre que le gradient d' $Al$  coïncidait avec la variation en épaisseur du cobalt le long de l'échantillon.

#### 4.2.2.1 Mesures régulières de $M_s \cdot t_{Co}$ pour différentes températures au VSM-SQUID

De manière à avoir une bonne précision en position, des découpes régulières de l'échantillon le long du gradient d'aluminium ont été réalisées tous les  $2mm$ <sup>1</sup>. La séquence utilisée a été commune à tous les morceaux et consistait à mesurer le cycle de moment magnétique par unité de volume ( $m(H_{OOP})(emu = 10^3 A \cdot m^2)$ ) en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la surface de l'échantillon. Le champ a été appliqué entre  $-1T$  et  $1T$  pour tous les morceaux. Comme décrit au chapitre 3, la valeur de  $M_s \cdot t$  a été extrapolée à 0 avec les droites extraites à forts champs, donc  $M_s \cdot t = M(1T) \cdot t$ . L'évolution de  $M_s \cdot t$  le long du gradient à température ambiante ( $300K$ ) est représentée en figure 4.3. Le processus de traitement des cycles a été présenté plus en détails au chapitre précédent.

On distingue deux zones pour l'évolution du signal  $M_s \cdot t_{Co}$  (cf fig. 4.3, zones *I* et *II*). Dans la zone *I* (pour des positions comprises entre  $33, 5mm$  et  $46mm$ ), le signal est constant. On peut donc assimiler cette zone à celle où l'épaisseur de  $Co$  est constante et égale à  $0, 6nm$  comme annoncé dans les consignes de dépôts. La valeur de  $M_s$  est alors elle aussi constante pour cette portion de l'échantillon. On trouve pour cette zone :  $M_s \cdot t_{Co} = (6, 8 \pm 1, 5) \cdot 10^{-4} A$ , donc en prenant l'épaisseur de  $Co$  annoncée ( $0, 6nm$ ), nous obtenons pour cette zone un  $M_s$  constant égal à  $1, 1MA/m$ , ce qui correspond bien aux valeurs mesurées pour cette tricouche [90]. La valeur annoncée dans les tables pour un  $Co$  volumique à  $300K$  est de  $1, 37MA/m$ , ce qui représente une chute de 20% pour notre épaisseur de  $0, 6nm$  (partie la plus épaisse de notre tricouche). Cette valeur d'aimantation plus faible que celle de volume va de pair avec une valeur de  $T_c$  et une valeur de constante d'échange  $A_{ex}$  qui se verront réduites, du fait d'un effet de taille (épaisseur très fine) [91]. Nous développerons ces points par la suite (cf paragraphe suivant).

Ensuite, dans la zone *II* (pour des positions comprises entre  $33, 5mm$  et  $17mm$ ), le signal *VSM – SQUID* à température ambiante ( $300K$ ) décroît de manière continue. Cette deuxième zone vient illustrer le fait que l'oxydation du  $Co$  est alors active et son épaisseur commence à diminuer avec la pente de  $0, 01nm/mm$  due au gradient. Il est nécessaire de vérifier si cette chute du signal est due uniquement à la variation d'épaisseur de  $Co$  ou si le moment magnétique varie aussi.

Pour cela, la séquence de mesure a été reproduite pour 4 températures différentes ( $150, 200, 250$  et  $300K$ ). Le travail de caractérisation à différentes températures est destiné à distinguer les contributions de la variation de l'épaisseur de  $Co$  ( $t_{Co}$ ) premièrement et de la variation de l'aimantation à saturation ( $M_s$ ) dans un second temps, pour un signal total  $M_s \cdot t_{Co}$ . A basse température, nous nous attendons à ce que la chute de signal de  $M_s \cdot t_{Co}$ , si elle a lieu le long du gradient, soit dominée par la variation annoncée de l'épaisseur de  $Co$ . Par ailleurs, à température ambiante, la chute du signal peut être due en partie à la variation d'épaisseur, mais nous pouvons aussi imaginer qu'une dépendance en  $M_s$  puisse exister du fait de la très faible épaisseur de nos

1. Avec une technique de découpe précise et automatisée par pointe diamant, disponible à l'institut : le scribeur

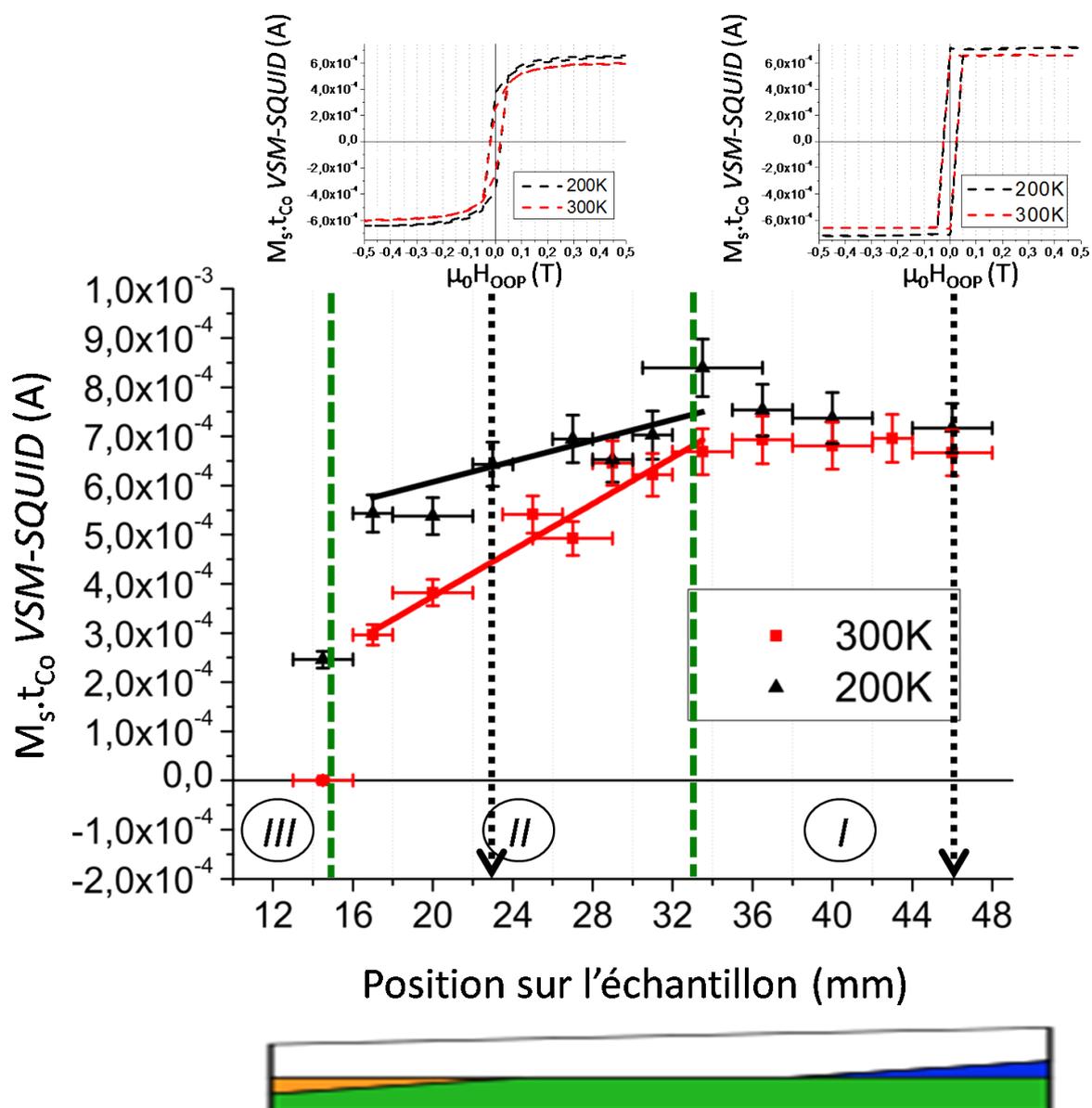


FIGURE 4.3: Valeurs de  $M_s \cdot t_{Co}$  extraites des cycles  $VSM - SQUID$  en fonction de la position le long de l'échantillon, à 200 et à 300K. (Les barres d'erreur horizontales sont exprimées par rapport à la largeur de nos morceaux découpés. Les barres d'erreur verticales représentent les 7% d'erreur relative déduite de mesures répétées  $VSM - SQUID$  de nos films ultra-minces, cf chapitre 3).

En encart sont donnés des exemples de cycles mesurés pour différentes positions (ici 23 et 46mm). Les zones I, II et III mises en évidence seront décrites dans la section concernée.

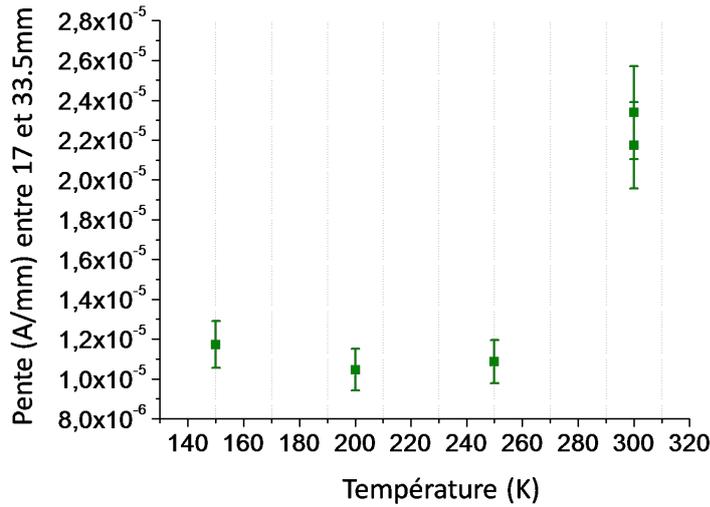


FIGURE 4.4: Valeurs de la pente de  $M_s \cdot t_{Co}$  avec la position, extraites pour les 4 températures pour la zone II, qui correspond à la zone où l'épaisseur de  $Co$  diminue progressivement.

couches (et donc d'une valeur de  $T_c$  diminuée).

$M_s \cdot t$  : Pour ce faire, nous avons réalisé une approximation linéaire du signal  $M_s \cdot t$  en fonction de la position  $pos$  (en  $mm$ ) sur l'échantillon entre 17 et 33,5  $mm$  (cf lignes continues en figure 4.3). Les valeurs de la pente (en  $A/mm$ ) pour les quatre différentes températures sont reportées en figure 4.4. Nous remarquons que cette valeur présente une forte augmentation à l'approche de la température ambiante (la valeur est doublée). L'effet de variation du signal, dû uniquement à la variation d'épaisseur du cobalt doit être inchangé selon la température ; cette décroissance soudaine du signal à température ambiante (forte hausse de la pente en  $A/mm$ ) a donc une autre source : une diminution de la valeur de  $T_c$ . Cela nous permet de dire qu'à 300K, la chute du signal  $M_s \cdot t$ , dans la zone où le  $Co$  est oxydé, est le résultat d'une combinaison entre la chute de l'épaisseur de  $Co$  et d'une chute du signal de  $M_s$ .

$M_s$  : Cette évolution est propre aux mesures à température ambiante (cf fig. 4.5) car nous ne retrouvons pas d'évolution du signal de  $M_s$  pour les trois autres températures (cf figures en annexe A). A basses températures, la variation de la valeur de  $M_s$  n'est que très faible dans la zone II et la valeur de  $M_s$  fluctue autour d'une valeur moyenne comprise entre 1,2 et 1,25  $MA/m$  pour toute la gamme des positions concernées (zones I et II, cf annexe A).

Enfin, dans la zone III (pour des positions inférieures à 17  $mm$ ), le signal  $VSM - SQUID$  chute fortement à 300K : le système est considéré comme paramagnétique à 300K. Lorsque l'on diminue la température de mesure, la zone où l'aimantation chute à 0 se décale vers des épaisseurs plus fines de  $Co$  (voir la comparaison entre les mesures réalisées à 200K et les mesures à 300K en figure 4.3).

Au final, ce travail de caractérisation a été un point clé dans la compréhension de notre système car il nous a permis de définir une évolution pour  $M_s$  (cf fig.4.5) en utilisant l'évolution obtenue pour  $M_s \cdot t$  et l'approximation mentionnée en début de section selon laquelle nous avons pris comme hypothèse de décrire la variation d'épaisseur de  $Co$  égale à la pente donnée pour le

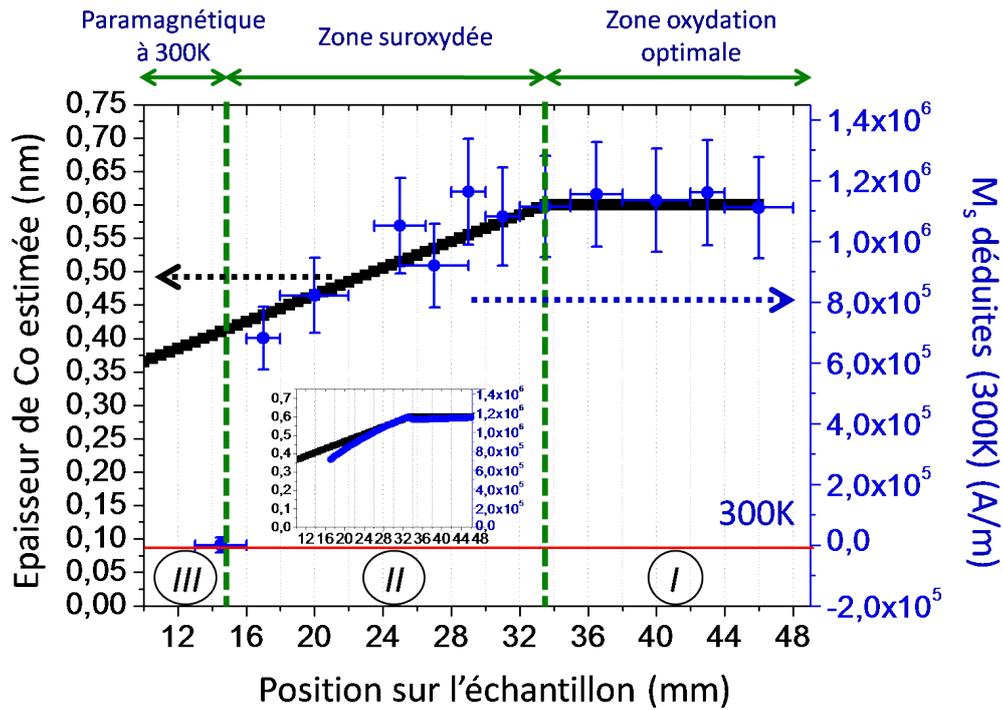


FIGURE 4.5: Signal de  $M_s$  (A/m) déduit des mesures de  $M_s \cdot t$  à 300K pour une gamme de position entre 17 et 46mm. Les barres d'erreur horizontales correspondent à nouveau à la longueur des morceaux mesurés (au VSM – SQUID) et les barres d'erreur verticale sont déduites de la somme des erreurs relatives sur  $M_s \cdot t$  (7%) et sur  $t$  ( $\approx 8\%$ ) (cf annexe J et chapitre 3). Sur l'axe de gauche, épaisseur estimée des mesures de  $M_s \cdot t$  et de la pente donnée lors du dépôt (0, 01nm/mm), pour la couche de Co le long de l'échantillon (nm). En encart, signal de  $M_s$  déduit de l'approximation linéaire du signal de  $M_s \cdot t$  en fonction de la position (fit) et de la pente du gradient d'épaisseur connue.

gradient d'aluminium à partir de la zone II (cf fig. 4.5). La chute du signal de  $M_s$  pour la zone II est due à la chute d'épaisseur du Co, mais aussi à la chute du signal de  $M_s$  (cf encart de la figure 4.5). Rappelons ici que cette approximation sera la seule utilisée pour décrire nos échantillons. Le reste des conclusions sera tiré uniquement de l'exploitation des différentes mesures. Nous utiliserons par la suite cette variation de  $M_s$  ainsi déduite comme une référence pour l'extraction d'autres valeurs telles que l'anisotropie effective à 300K (cf section 4.2.3).

#### 4.2.2.2 Cycle $M_r \cdot t(T)$ et évaluation de la variation de $T_c$ le long de l'échantillon

Nous développerons dans ce paragraphe les mesures supplémentaires qui ont été réalisées sur le VSM – SQUID pour certains morceaux de l'échantillon. Nos mesures ont été plus poussées pour les morceaux se trouvant dans la zone de transition voisine de la zone considérée comme paramagnétique à température ambiante (zones C et D décrites au début de ce chapitre). L'idée était d'avoir une idée précise de l'évolution de la température de Curie du Co pour ce cas de couche ultra-fine présentant un gradient d'oxydation<sup>2</sup>. Nous avons donc choisi des valeurs de pas en température plus petits que ceux des mesures présentées précédemment et avons balayé une gamme de 100 à 400K pour ces morceaux.

2. Donc un gradient d'épaisseur de Co

**Extraction de la variation de  $T_c$  le long du gradient d'oxydation (d'épaisseur)**  $M_{s\ lf}$  représente l'aimantation de la couche pour un champ magnétique appliqué très faible (dans une gamme de 1 à  $10mT$ ,  $lf$  pour low field en anglais [92]). C'est l'étude de cette grandeur qui va nous permettre de déduire les variations de la  $T_c$  [42]. En effet, la  $T_c$  d'un matériau se définit comme la température de transition pour laquelle un ordre ferromagnétique apparaît spontanément à longue portée, ceci sans champ extérieur appliqué. Une aimantation nulle à faible champ magnétique est donc le signe d'une température de Curie plus faible que la température de mesure<sup>3</sup>, et donc d'un régime de type paramagnétique. Les cycles réalisés en température ont donc permis d'extraire  $M_{s\ lf} \cdot t(T)$  à champ magnétique quasiment nul. Nous verrons au chapitre suivant la distinction qui a été faite entre le fait de déterminer  $T_c$  en annulant  $M_{s\ lf} \cdot t$  ou en annulant  $M_s(1T) \cdot t$ .

Comme nous le verrons au chapitre 5, dans certaines zones, un champ coercitif nul est observé avec la formation spontanée d'une zone de désaimantation. Dans ces zones, il faut donc appliquer un faible champ magnétique pour révéler l'aimantation à rémanence, que nous appelons ici  $M_{s\ lf}$ . La valeur de ce champ est précisé en figure 4.6. Certains des cycles  $M_{s\ lf} \cdot t(T)$  sont représentés en figure 4.6 pour différentes positions. Nous y remarquons une chute progressive de la  $T_c$  lorsque l'on se déplace vers les zones où l'épaisseur du  $Co$  diminue. L'échelle verticale étant la même pour tous les graphes, nous observons aussi la chute progressive de la valeur de  $M_{s\ lf} \cdot t$  lorsque l'oxydation progresse.

De manière à extraire la température de Curie de ces mesures, nous avons choisi d'utiliser le modèle proposé par Kuz'Min [93] qui utilise une combinaison de deux lois puissances pour décrire l'évolution de l'aimantation réduite  $m(T) = M_r(T)/M_r(T = 0) = M_r(T)/M_0$  en fonction de la température :

$$m(T/T_c) = [1 - s \times (T/T_c)^{3/2} - (1 - s) \times (T/T_c)^{5/2}]^{1/3}, \quad (4.1)$$

avec  $s$ , le paramètre de forme de la courbe. Ce dernier permet de décrire à quel point la courbe obéit à la loi de Bloch pour les faibles températures ( $(T/T_c)^{3/2}$ ), et la manière dont la courbe est plus proche d'une loi de type  $(T/T_c)^{5/2}$  pour la région critique, où  $T$  est proche de  $T_c$ . Il a été montré que cette loi est applicable pour toute la gamme de température comprise entre 0 et  $T_c$  [94, 95], chacune des lois puissance définissant l'allure de  $m(T)$  pour un sous-intervalle de température.

Le point fort de ce modèle réside dans le fait que l'intégralité des dépendances de  $m(T)$  peuvent être décrites à l'aide d'un unique paramètre  $s$  [93]. Ce paramètre de forme est fonction de nombreux autres, propres au matériau, tels que la  $T_c$  et  $M_0$ , mais aussi  $D_{sw}$ , qui est décrit comme la constante de raideur des ondes de spin (terme entrant dans la relation de dispersion des ondes de spins). Nous verrons en annexe B comment extraire la constante d'échange  $A_{ex}$  à partir de  $D_{sw}$ . L'ajustement de la courbe B.1 sur les points expérimentaux a été réalisé de deux manières : nous avons premièrement laissé libre la valeur de  $s$  entre 0 et 2,5 (selon les conditions aux bornes définies par Kuz'Min [93]), puis, nous avons réalisé un deuxième fit en fixant  $s$  égal à 0,13, comme l'avait mesuré Kuz'Min pour le  $Co$  hexagonal épais [93].

Nous avons testé l'influence de la valeur de  $s$ . Nous avons pu voir que le fait de laisser  $s$  libre entre 0 et 2,5 ou de le contraindre comme étant égal à 0,13 ne présente pas de forte variation

---

3. En effet, même dans le cas d'un échantillon désaimanté ou d'une mesure en axe difficile, l'application d'un faible champ suffit à restaurer une valeur non nulle de l'aimantation

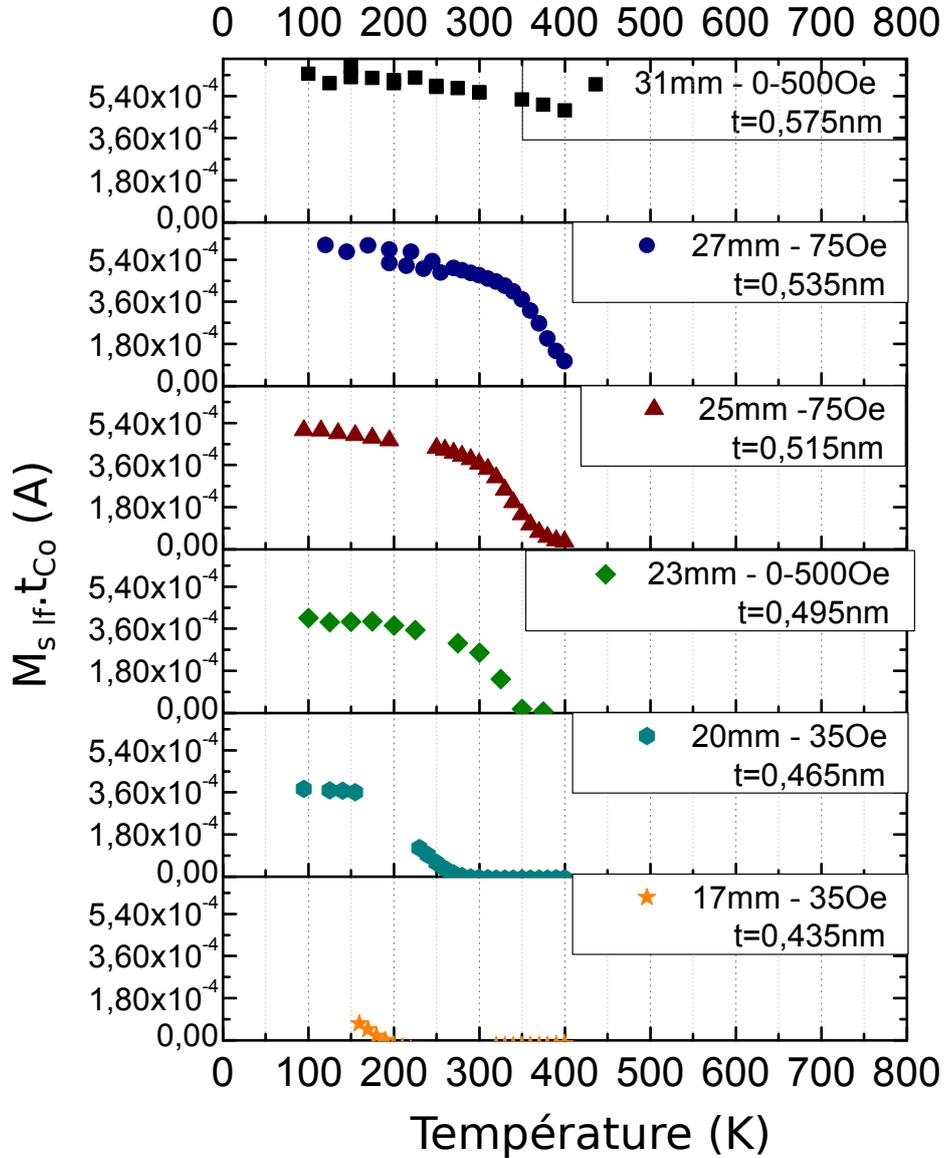


FIGURE 4.6:  $M_{s\text{ lf}} \cdot t(T)$  pour quelques positions de l'échantillon. La valeur de faible champ utilisé pour la mesure proche de  $T_c$  est précisé pour chacune des courbes ( $O_e = 10^{-4}T$ ). Les mesures à plus faibles  $T$  sont extraites pour un champ d'environ  $500O_e = 50mT$ , qui représente le pas minimum de champ utilisé lors de l'enregistrement des cycles VSM – SQUID entre  $-1$  et  $1T$  présentés en section 4.2.2.1. Les mesures à 31 et à 23mm ont été déduites de ces cycles, d'où la valeur du champ appliqué compris entre 0 et  $500O_e$  pour l'extraction de  $M_{s\text{ lf}} \cdot t(T)$ .

pour la déduction de  $T_c$ . Ce travail de fit, est donc avant tout axé sur l'extraction de la valeur de  $T_c$ . Nous avons donc regroupé les valeurs déduites pour nos deux ajustements en figure 4.7 b. Nous verrons en annexe B que cette valeur de  $s$  joue par contre fortement sur la gamme de valeurs que nous pouvons déduire pour la constante d'échange  $A_{ex}$ . Lorsqu'il est laissé libre,  $s$  est quasiment nul (de l'ordre de  $10^{-5} - 10^{-4}$ ) pour les positions où l'épaisseur de  $Co$  est forte (zone I) et tend à fortement augmenter lorsque l'on se rapproche de la zone de transition (cf graphe en annexe B).

Un exemple de fit de nos données  $m(T)$  est représenté en figure 4.7 a et les valeurs de  $T_c$  déduites sont reportées en figure 4.7 b. Deux régimes se distinguent alors. Pour les fortes épaisseurs de  $Co$  (dans la zone I), la valeur de la  $T_c$  semble atteindre un plateau d'une valeur de  $500K$ . Cela est très proche de la valeur mesurée par Metaxas et al. [96] ( $470K$ ) pour leur film de  $Co$  de  $0,6nm$  d'épaisseur. Nous pouvons tout de même émettre une petite réserve quant aux valeurs de  $T_c$  déduites dans cette zone où l'épaisseur de  $Co$  est la plus forte. En effet, la gamme de température balayée (jusqu'à  $400K$ ) n'est pas suffisante pour déterminer avec précision la  $T_c$  de ces positions, le signal d'aimantation restant assez fort. Ceci explique la dispersion des valeurs déduites du fit pour cette zone.

Puis, nous retrouvons une dégradation de la  $T_c$  lorsque nous progressons de la zone I à la zone III (équivalentes aux zones A à D mentionnées au début de ce chapitre), jusqu'à atteindre  $305K$  pour une position proche de  $20mm$  ( $t_{Co} \approx 0,465nm$ ). Sa chute se fait de manière progressive et apparemment linéaire dans la zone II.

Nous avons ainsi pu avoir une idée quant à l'évolution de la température de Curie le long de l'échantillon, et avons pu la comparer à l'évolution des autres paramètres décrits précédemment.

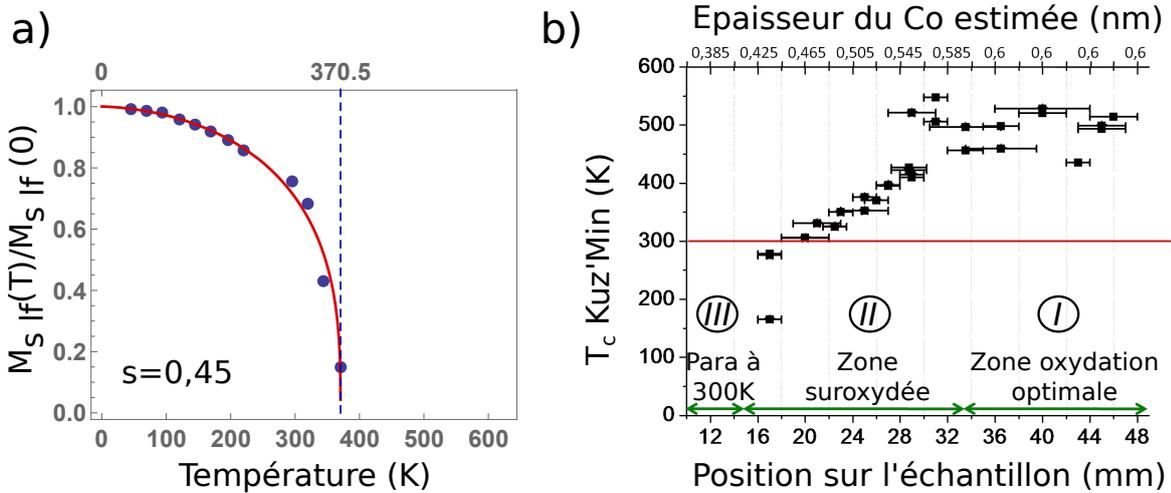


FIGURE 4.7: a) Signal  $M_s I_f(T)/M_0$  en fonction de la température pour la position  $x = 26mm$ , fit réalisé en prenant le paramètre  $s$  libre entre 0 et 2,5. Ici nous obtenons  $T_c = 370,5 K$ .

b)  $T_c$  en fonction de la position en mm. Entre 33,5 et 46 mm : gamme de température de la mesure trop faible pour extraire  $T_c$  avec précision pour ces positions-là. Les barres d'erreur données en abscisse représentent la largeur des morceaux mesurés ; l'erreur verticale n'est que très faible (sauf en zone I) de par le travail de fit, nous choisissons de ne pas la faire apparaître ici.

#### 4.2.2.3 Mesures régulières en Kerr polaire - Évolution du signal d'aimantation à champs magnétiques faibles

L'évolution du signal  $M \cdot t$  peut être déduite des mesures régulières de microscopie MOKE et donc venir compléter nos mesures du moment magnétiques en VSM – SQUID. En effet, le

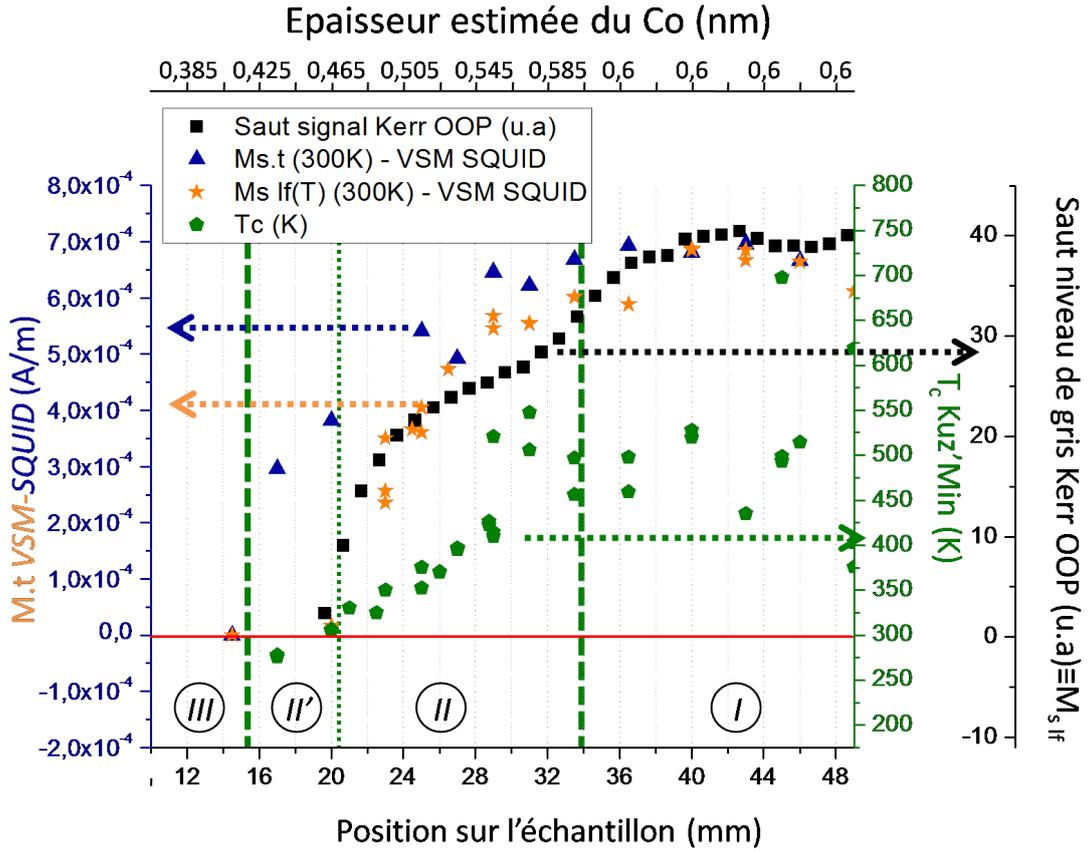


FIGURE 4.8: Comparaison  $M_s \cdot t$ ,  $M_s \cdot lf \cdot t$ , signal Kerr polaire et  $T_c$  pour un même échantillon. Rappel des zones définies en figure 4.3, et mise en évidence d'une zone intermédiaire  $II'$ .

signal acquis est proportionnel à la composante perpendiculaire de l'aimantation comme expliqué au chapitre précédent. Les champs utilisés en Kerr polaire sont bien plus faibles que lors des mesures  $VSM - SQUID$ , nous aurons donc accès à un signal correspondant au produit  $M_s \cdot lf \cdot t$  (avec, pour rappel,  $lf$  la notation pour bas champs (low field)).

Nous avons réalisé la même mesure qu'en figure 4.2, et avons extrait pour chacune des positions la valeur du saut du signal Kerr. Pour plus de clarté, nous avons représenté les valeurs déduites pour un pas d'1 mm cette fois-ci. La figure 4.8 représente cette évolution, qui est comparée à celles de  $M_s \cdot t$ ,  $M_s \cdot lf \cdot t$  et  $T_c$  discutées juste avant. Tout d'abord, nous remarquons que le signal Kerr arbore une allure très semblable à celle de  $M_r \cdot t$ , extraite des mesures  $VSM - SQUID$ , et ce malgré le fait que l'interface, et donc le chemin optique, évolue tout au long du gradient d'oxydation. Cela confirme donc bien le fait que nous pouvons, dans ce cas précis, assimiler la variation du saut de signal Kerr à l'évolution du produit  $M_s \cdot lf \cdot t$  ( $VSM - SQUID$ ), ceci sans être gênés par la modification de l'interface.

Nous mettons en évidence en figure 4.8 une zone intermédiaire ( $II'$ ), pour laquelle nous avons une chute à 0 des signaux  $M_s \cdot lf \cdot t$  ( $MOKE$  et  $VSM - SQUID$ ), tout en gardant un fort signal d'aimantation à saturation  $M_s \cdot t(1T)$ . Nous sommes donc dans une zone paramagnétique particulière qui présente une susceptibilité magnétique relativement forte, bien que la valeur de la  $T_c$  mesurée soit inférieure à l'ambiante. Un signal d'aimantation est restauré avec l'application d'une valeur de champ magnétique de  $1T$ . De plus, nous avons vu au chapitre 1, en section 1.1.1,

que la courbe d'aimantation d'un matériau paramagnétique n'était pas forcément linéaire selon les cas de mesures, et que l'existence d'un régime de saturation pour de fortes valeurs de champs magnétiques appliqués était possible. Nous avons représenté en figure 4.9 l'allure théorique de la valeur de la susceptibilité magnétique  $\chi$  pour un matériau ferromagnétique. Cette représentation met en évidence le fait que l'existence d'une susceptibilité toujours forte pour la zone II est bien possible si cette zone se trouve être juste au-dessus de la température de Curie. La pente de  $\chi(T)$  est alors encore convergente et il est effectivement plausible de restaurer une forte valeur d'aimantation sous un champ fort. C'est cette zone que nous avons étudiée plus en détail au chapitre 5.

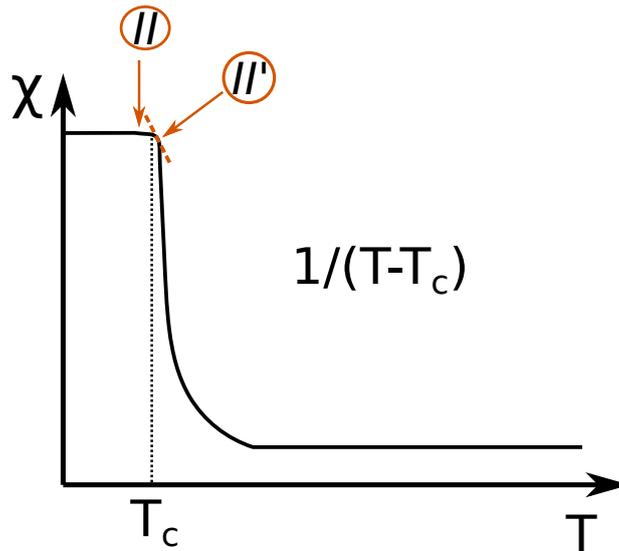


FIGURE 4.9: Graphe représentant la susceptibilité magnétique  $\chi$  en fonction de la température  $T$  pour un matériau ferromagnétique. Nous y avons fait apparaître la zone suroxydée ferromagnétique II et la zone suroxydée paramagnétique à l'ambiante, mais avec une forte susceptibilité II'.

Une troisième étude vient confirmer l'évolution de  $M$  à faibles champs et est reportée en annexe C. Il s'agit de l'étude du saut du signal d'effet Hall extraordinaire (*EHE*) lors des mesures d'anisotropie présentée ci-dessous.

### 4.2.3 Mesure du champ d'anisotropie et déduction de l'anisotropie effective

Afin d'avoir accès à l'anisotropie sur tout l'échantillon, nous avons mesuré le champ d'anisotropie planaire avec plusieurs méthodes : nous avons utilisé des mesures d'effet Hall extraordinaire (*EHE*) à différentes températures, avec l'application d'un champ magnétique dans le plan du film de  $Co$ , alliée à des mesures en Kerr polaire avec un champ magnétique appliqué parallèlement à la surface de l'échantillon, à température ambiante.

De plus, deux méthodes ont été employées en parallèle pour déduire de ces techniques le champ d'anisotropie approprié. Ces méthodes d'extraction sont décrites en annexe D. Nous avons utilisé le modèle de renversement d'un domaine unique de Stoner et Wholfart, dont le principe est énoncé au chapitre 1, ainsi que la méthode d'intégration de l'aire sous les courbes d'aimantation, dont l'explication mathématique est aussi annoncée au chapitre 1 et est précisée en annexe D.

### 4.2.3.1 Extraction du champ d'anisotropie $\mu_0 H_a$

Les valeurs de  $\mu_0 H_a$  groupées et moyennées selon les différentes techniques de mesures et d'extraction utilisées, sont représentées en figure 4.10 en fonction de la position sur l'échantillon et de la température de mesure.

Nous avons vu précédemment et en annexes A et C, que la forte chute de  $M_s$  se manifeste surtout à température ambiante. Pour rappel, dès  $250K$ , la variation en position du signal  $M_s \cdot t$ , n'est plus due qu'à la diminution d'épaisseur de cobalt le long de l'échantillon, et la valeur de  $M_s$  est constante en position et proche de  $1,2 - 1,25 MA/m$  (cf annexe A et section précédente). Les mesures réalisées à  $240K$  refléteront donc bien l'évolution de l'anisotropie pour une épaisseur de ferromagnétique qui diminue, sans avoir d'effet supplémentaire induit par la diminution de  $M_s$ .

**Valeur dans la zone I :** De nombreuses études ont été réalisées sur l'évolution du champ d'anisotropie avec l'épaisseur et la tendance observée pour nos échantillons coïncide bien avec les conclusions déjà établies [90, 97]. Grolier et al. [97] déduisent un champ d'anisotropie effective d'environ  $0,9T$  pour une épaisseur de  $Co$  de  $0,8nm$  pour des couches de type  $Co/Au$ , à température ambiante. De même, Belmeguenai et al. [90] déduisent un champ d'anisotropie qui augmente lorsque  $t_{Co}$  diminue pour atteindre  $0,95T$  à  $t_{Co} = 0,6nm$  pour une tricouche équivalente à la nôtre, aussi à température ambiante. C'est très proche des valeurs obtenues dans la zone I (pour les positions entre  $33, 5$  et  $49mm$ ), où  $t_{Co} = 0,6nm$ .

**Évolution en épaisseur de  $Co$  et en température :** La tendance qui se remarque à basses températures, est que le champ d'anisotropie augmente lorsque nous progressons vers des zones de plus forte oxydation qui présentent une plus faible épaisseur de  $Co$ , en allant de la zone I vers la zone II (de  $50$  vers  $20mm$ ).

Cependant, la tendance s'inverse lorsque l'on augmente la température de mesure. Pour  $280$  et  $300K$ , le champ d'anisotropie semble quasiment constant le long de l'échantillon, voire même légèrement plus faible pour les zones les plus oxydées (avec un  $t_{Co}$  plus faible). Pour rappel  $\mu_0 H_a = 2K_{eff}/M_s$ , les variations de la valeur du champ d'anisotropie seront donc directement fonctions de l'évolution de  $M_s$ , ainsi que de  $K_{eff}$ , qui sera déduite au paragraphe suivant, le long de l'échantillon.

### 4.2.3.2 Dédution de l'anisotropie effective $K_{eff}$

Connaissant l'évolution de  $M_s$  le long de l'échantillon, nous pouvons déduire une allure pour l'évolution de  $K_{eff}$  à  $240$  et à  $300K$ . Ce travail d'extraction est résumé en figure 4.10. Nous y avons représenté l'évolution de  $K_{eff}$  le long du gradient d'oxydation pour les deux températures. Une augmentation de cette valeur avec le degré d'oxydation (dans la zone II) à basse température ( $240K$ ) est notée. Cela concorde bien avec les observations faites pour  $\mu_0 H_a$  à  $240K$  et le fait que  $M_s$  soit constant en position pour cette température. Par contraste, une légère décroissance de  $K_{eff}$  est observée pour les zones de sur-oxydation à température ambiante. Ici, comme  $M_s$  diminue,  $\mu_0 H_a$  devrait fortement augmenter. Or ce rapport reste quasiment constant à  $280$  et à  $300K$ , nous avons donc bien une compensation de cette chute de  $M_s$  par une diminution de la valeur de  $K_{eff}$ . Les interfaces étant modifiées et la  $T_c$  des zones oxydées se rapprochant de plus en plus de la température ambiante, cette perte de signal magnétique vient prendre le dessus sur l'évolution de  $K_{eff}$  attendue uniquement pour une chute de  $t_{Co}$  (décrite à  $240K$ ).

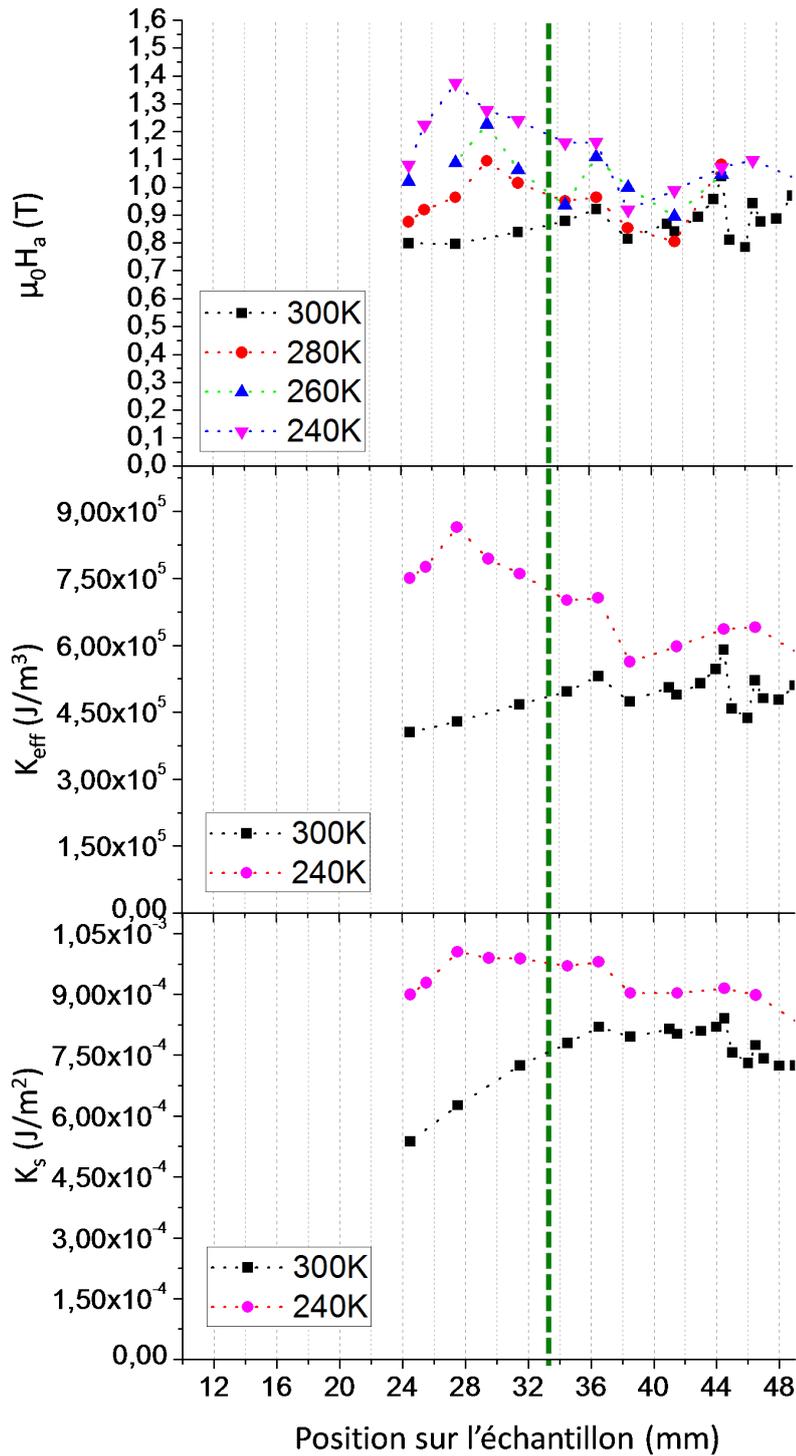


FIGURE 4.10: Champ d'anisotropie en fonction de la position sur l'échantillon et de la température de mesure. (*positions et zones équivalentes à celles utilisées dans la section précédente - champs d'anisotropie déduits avec les techniques d'extraction les plus précises, adaptées aux zones*).

Valeurs de  $K_{eff}$  déduites des mesures de champ d'anisotropie le long de l'échantillon pour différentes températures ( $J/m^3$ ).

Valeurs de l'anisotropie de surface  $K_s$  le long de l'échantillon pour différentes températures ( $J/m^2$ )

$K_{eff}$  varie en fonction de l'aimantation  $M_s$ , intervenant dans l'expression de  $K_d$  (constante dipolaire définie au chapitre 1, en section 1.3.3), ainsi qu'en fonction de la constante d'anisotropie de surface  $K_s$  et de l'épaisseur du film  $t$  (rappelons que :  $K_{eff} = \frac{K_s}{t} - K_d$ , cf chapitre 1, section 1.4.1). La valeur de l'aimantation étant considérée comme constante à  $240K$ , nous pouvons déduire que la variation du champ d'anisotropie, observée en position, est due uniquement à la variation de l'épaisseur du film et à la variation de la constante d'anisotropie de surface  $K_s$ , si elle a lieu. A l'inverse, à  $300K$ , la variation de  $K_{eff}$  observée est une combinaison de la variation d'épaisseur de  $Co$ , de la variation de l'aimantation, donc de  $K_d$ , ainsi que de celle de l'anisotropie de surface.

#### 4.2.3.3 Dédution de la constante d'anisotropie de surface $K_s$

Nous pouvons déduire de  $K_{eff}$  une évolution pour la valeur d'anisotropie de surface  $K_s$ . Pour ce faire, nous avons négligé la composante de contribution volumique d'anisotropie uniaxiale magnétocristalline (cf chapitre 1, section 1.4.1 et [4]). Ainsi  $K_s(J/m^2) = K_{eff} \cdot t + K_d \cdot t$  (avec  $K_d = \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ ) a été extrait. Notons que la valeur d'anisotropie de surface déduite ici représente la somme des valeurs d'anisotropie de surface pour les deux interfaces de notre tricouche ( $Pt/Co$  et  $Co/Al_2O_3$  ou  $Co/Al$ ). Son évolution à  $300$  et à  $240K$  est représentée en figure 4.10.

A  $300K$ , nous y retrouvons une valeur maximale de l'anisotropie de surface dans la zone  $I$  (sur une gamme de position de  $34$  à  $43mm$ ) où l'oxydation de l'interface est optimale et l'orientation de l'aimantation est alors très perpendiculaire. Nous remarquons aussi une légère diminution de cette valeur pour les positions correspondantes à la zone "sous-oxydée" (à partir de  $43mm$ ), qui peuvent correspondre à une oxydation de l'interface moins poussée, donc à une anisotropie de surface modifiée en partie par la présence de liaisons de type  $Co - Al - O$ .

Enfin, nous notons que la chute de cette valeur vers la zone  $II$  dite de "sur-oxydation" arbore une allure assez parabolique à  $300K$ . Un ajustement de type parabolique est donc réalisé pour cette courbe et sera donné en conclusion du chapitre. Il permet une interpolation de la valeur de  $K_s$  connaissant la position sur l'échantillon, à température ambiante (pour des positions de  $24$  à  $49mm$ ).

A  $240K$ , la variation de la valeur de  $K_s$  est principalement due à la variation d'épaisseur de  $Co$  et à la modification de l'interface et n'est que très faible. Les valeurs déduites sont plus importantes qu'à  $300K$  pour toute la gamme de positions.

L'effet purement dû à une modification de l'interface est accessible dans la zone  $I$  à épaisseur fixe (pour des positions supérieures à  $33, 5mm$ , cf fig. 4.11). Ici, l'épaisseur du  $Co$  est constante et nous remarquons que  $K_s$  reste globalement constant à  $240K$  et à  $300K$ . Ensuite, pour la zone  $II$  (positions inférieures à  $33, 5mm$ ), l'effet de la diminution de  $t_{Co}$  ainsi que de la modification de l'interface<sup>4</sup> s'expriment. Nous avons donc une cassure de pente quant à l'évolution de  $K_s$  et de  $K_s/t$  à partir de cette position (cf fig.4.11). Pour une valeur de  $K_s$  constante en position, une augmentation du rapport  $K_s/t$  lorsque  $t$  diminue est attendue : c'est ce que nous observons dans la zone  $II$  pour  $T = 240K$ , mais qui n'est pas observé à  $300K$  (cf fig. 4.11).

Ces évolutions très différentes pour  $K_s$  à  $300K$  et à  $240K$  sont dues au fait qu'à  $300K$ , la  $T_c$  de notre échantillon est de plus en plus proche de la température de mesure ( $300K$ ) et les effets s'en trouvent donc accentués. La variation de  $M_s$ , donc de  $K_d$ , vient amplifier ces variations à  $300K$ . La cassure de pente n'est donc plus du tout la même entre les deux températures pour les

4. Le phénomène d'oxydation poursuivant sa progression

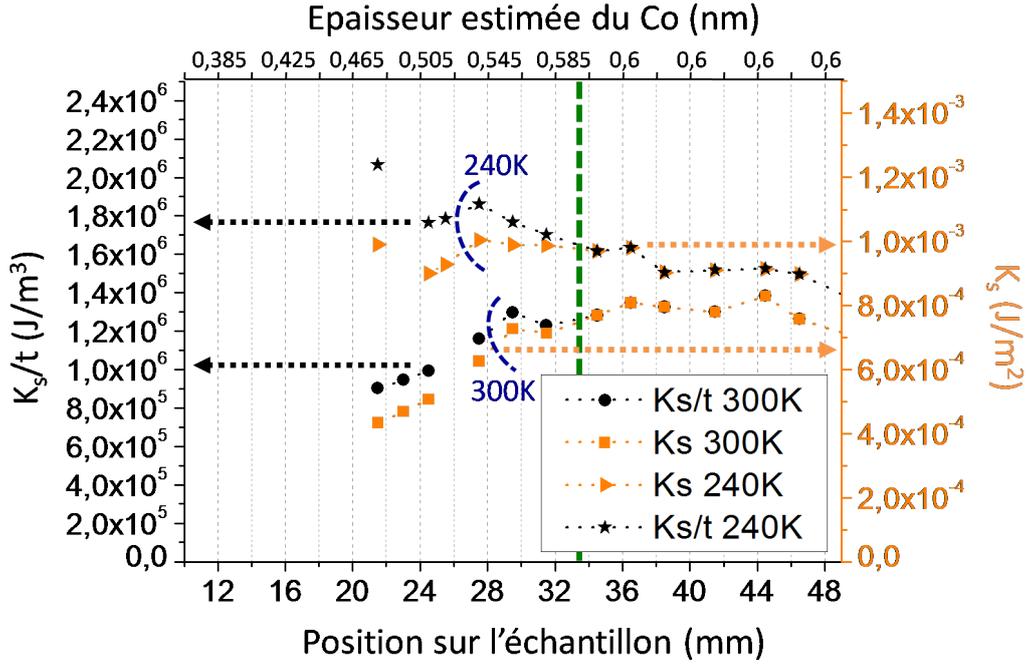


FIGURE 4.11: Evolution des signaux déduits pour  $K_s/t$  (en  $J/m^3$ ) et pour  $K_s$  (en  $J/m^2$ ) en fonction de la position sur l'échantillon et de la température de mesure. La conversion position - épaisseur de Co est aussi représentée.

positions inférieures à 33, 5mm (cf figure 4.10 et 4.11). Pour comprendre les différences observées entre les deux températures, nous pouvons noter que  $K_{eff}$  étant fonction du rapport  $K_s/t$ , sa variation est plus faible lorsque  $t$  et  $K_s$  varient avec le même signe, ce qui est le cas à 300K où  $K_{eff}$  diminue assez peu du fait de la diminution de ces deux facteurs dans la zone sur-oxydée.

Nous devons noter que notre travail d'extraction des valeurs de  $K_s$  à partir des valeurs déduites pour  $K_{eff}$  est basé sur une approximation. En effet la gamme d'épaisseurs dans laquelle nous nous trouvons est trop faible pour pouvoir définir de manière correcte le terme d'anisotropie de volume rentrant initialement dans l'expression de l'anisotropie effective ( $K_{eff} = K_V - K_d + K_s/t = K_v + K_s/t$ , avec  $K_V$  le terme d'anisotropie magnetocristalline volumique du cobalt). Nous avons mentionné plus haut que, dans notre travail, la contribution volumique était uniquement due au facteur de forme de l'échantillon, soit :  $K_v = -K_d$ . Nous avons aussi vu au chapitre 1 que le terme magnetocristallin peut être négligeable selon la structure de cobalt obtenue lors du dépôt [4]. Il est donc plus difficile de lui donner une valeur précise dans ce cas de régime ultra-mince polycristallin (déposition par pulvérisation). En effet, nous nous trouvons dans la gamme d'épaisseur pour laquelle nous pouvions observer une valeur de pente nulle en traçant  $K_{eff} \cdot t(t)$ . Cette zone a été mise en évidence en figure 1.6 du chapitre 1. La manière de vérifier cette approximation ( $K_v = -K_d$ ) aurait été d'extraire la pente de la partie linéaire de  $K_{eff} \cdot t(t)$ , celle-ci correspondant directement au terme  $K_v$  (cf chapitre 1), puis de la comparer à nos valeurs de  $K_d$ . Nous ne pouvons donc pas vérifier cette approximation dans notre cas, car nos épaisseurs sont trop faibles pour mettre en évidence cette partie linéaire de la courbe (représentée en figure 1.6).

Pour conclure, nous avons donc une idée plus précise de l'évolution des paramètres magnétiques de notre échantillon en fonction du degré d'oxydation à l'interface du Co. Nous établirons

un premier exemple du diagramme de phase magnétique en fonction de la position sur l'échantillon en conclusion de ce chapitre. Nous rappellerons aussi les évolutions de certains de ces paramètres magnétiques de la tricouche tout le long du gradient d'oxydation.

Avant cela, nous allons rapidement mentionner les résultats de l'étude parallèle qui a été menée sur cet échantillon et qui consiste à mesurer la vitesse de propagation de parois de domaines en fonction de la position sur l'échantillon. Au début de ma thèse, nous cherchions à estimer la variation d'anisotropie effective de notre système de manière fine. Nous avons donc imaginé déduire son évolution en étudiant les vitesses de propagation de paroi de domaines, dont la loi de vitesse est fonction de  $K_{eff}$  en régime de reptation.

#### 4.2.4 Modification de la vitesse de propagation des parois

Cette étude a été réalisée de manière systématique et nous a permis d'évaluer la variation de vitesse de propagation des parois en régime de reptation. Nous avons ainsi pu extraire pour chacune des positions de l'échantillon la barrière d'énergie  $U_c$  utile au dépiégeage et donc à la propagation de la paroi (cf annexe F pour la description complète de cette étude). Cette étude a été réalisée dans les zones où le régime de propagation était dominant (cf section 4.2.1 de ce chapitre), car les zones où les sites de nucléation sont trop nombreux ne permettent pas de déduire facilement des valeurs de vitesse. Dans ce cas, le piégeage est trop important.

En conclusion, nous avons vu que la barrière d'énergie  $U_c$  ne peut pas être définie simplement et est fonction de nombreux paramètres tels que le paramètre de désordre, la force de piégeage d'un défaut, la densité de ces défauts ou encore l'énergie nécessaire pour créer la paroi de domaine [98]. Parmi ces termes, certains sont fonction de la constante d'anisotropie effective  $K_{eff}$ , et d'autres sont propres uniquement à l'environnement de dépôt et de mesure. Nous ne pouvons donc pas relier directement la variation de  $K_{eff}$  avec les termes entrant dans l'expression de la vitesse en régime de reptation (cf annexe F pour plus de précisions).

### 4.3 Conclusions

Ce travail de caractérisation très complet de l'échantillon nous a permis de mettre en évidence plusieurs zones distinctes le long du gradient d'oxydation. Nous avons aussi été en mesure de déduire une évolution pour les paramètres magnétiques principaux de cette tricouche, en fonction de la position sur l'échantillon, à partir de fits simples. Nous résumerons ici ces différents ajustements (fits) dans un tableau bilan.

Nous construirons un diagramme simple de configurations magnétiques, établi grâce aux résultats de ce chapitre et nous viendrons préciser sur quelle zone nous allons focaliser notre étude en champ électrique. L'établissement de ce diagramme a été fait en lien fort avec les travaux de thèse de N. Bergéard [92, 99]. En effet, les phases qu'il décrit en température pour son système, sont très proches de nos phases observées en position. Il étudie la zone de réorientation de spin pour un système de type  $Pt/Co(5\text{\AA})/Pt$  irradié uniformément par des ions  $He^+$ .

Nous avons donc rassemblé dans le tableau 4.1 les expressions des ajustements paraboliques déduits pour  $K_s$  ainsi que l'ajustement que nous pouvons déduire de nos mesures du produit  $M_s \cdot t$  à  $300K$ . Nous y avons aussi fait figurer la variation d'épaisseur que nous estimons pour le  $Co$ , qui est, rappelons-le, l'unique approximation faite pour l'extraction de tous ces paramètres (en effet, la pente annoncée pour le gradient correspond à celle du dépôt d'aluminium et non à celle du  $Co$  directement). Elle a été déduite grâce aux mesures  $VSM - SQUID$  donnant le signal  $M_s \cdot t$ . La chute d'épaisseur (avec la pente annoncée) s'amorce lorsque le signal  $M_s \cdot t$  n'est plus constant en position. Nous avons aussi représenté ces relations en figure 4.12 pour plus de lisibilité.

Ces ajustements sont donc une manière très rapide de déterminer les paramètres magnétiques utiles à la caractérisation de nos échantillons, en se basant uniquement sur la position sur l'échantillon. Notons que toutes ces variations sont exprimées en fonction de la position sur l'échantillon utilisé (en  $mm$ ) et pour une température de  $300K$ . Elles s'appliquent pour les zones  $I$  et  $II$  (positions comprises entre  $22$  et  $49mm$ ) pour l'ajustement de  $K_s$ , et pour les zones  $I$ ,  $II$  et  $II'$  (de  $17$  à  $46mm$ ) pour l'ajustement de  $M_s \cdot t$ , et pour les positions en-dessous de  $33,5mm$  (zone  $II$ ,  $II'$  et  $III$ ) pour la variation de  $t$ .

$M_s \cdot t$ (en $A$ )	$K_s$ (en $J/m^2$ )	$t$ (en $nm$ )
$-5,38 \cdot 10^{-4} + 6,23 \cdot 10^{-5} \times pos(mm) - 7,84 \cdot 10^{-7} \times (pos(mm))^2$	$-8,76 \cdot 10^{-4} + 8,31 \cdot 10^{-5} \times pos(mm) - 1,025 \cdot 10^{-6} \times (pos(mm))^2$	$0,6$ (si $pos(mm) > 33,5$ ) sinon $0,6 - 0,01 \times (33,5 - pos(mm))$

TABLE 4.1: Tableau bilan des interpolations de l'évolution de  $M_s \cdot t$ ,  $K_s$  et  $t$  en fonctions de la position sur l'échantillon  $pos(mm)$ .

Nous représentons ensuite en figure 4.13 le diagramme de configuration magnétique provisoire établi en fonction de la position sur l'échantillon (donc en fonction du degré d'oxydation de l'interface supérieure). Nous y faisons apparaître les configurations magnétiques envisagées selon les différentes positions sur l'échantillon, ainsi que l'évolution des paramètres magnétiques pour chaque zone. *Ce diagramme est analogue à celui qui a été reporté en annexe G, en fonction cette fois-ci de la température d'un système soumis à une réorientation de spin.*

Ce travail de caractérisation complet est très utile pour se repérer le long des échantillons. Le fait de changer d'échantillon pour réaliser des mesures supplémentaires, ou bien de réaliser un

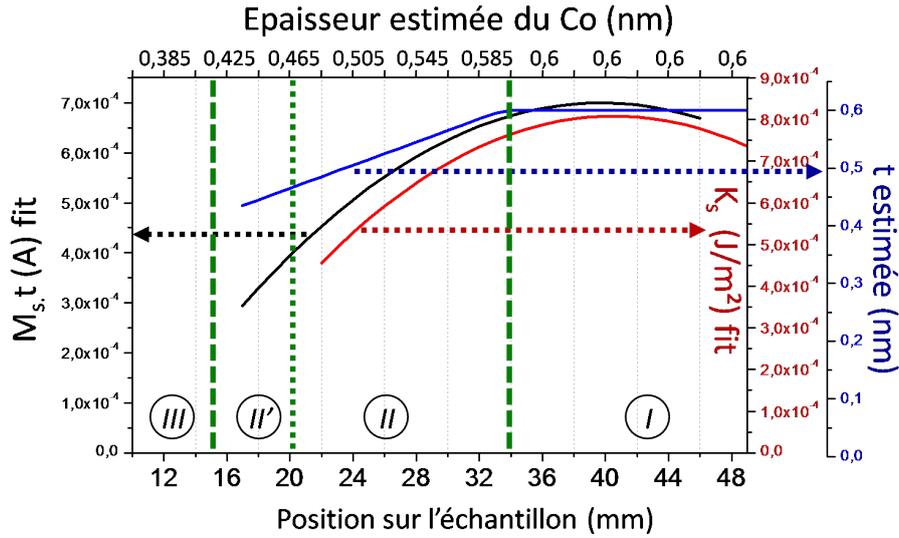


FIGURE 4.12: Représentation graphique des interpolations déduites pour l'évolution de  $M_s \cdot t$ ,  $K_s$  et  $t$  en fonction de la position en  $mm$  sur l'échantillon.

recuit, qui pourrait changer les propriétés magnétiques de la tricouche, n'est alors plus gênant car il est très facile de situer à nouveau les différentes zones observées.

Il a aussi permis de mettre en évidence différentes zones qui peuvent présenter un intérêt pour l'application de champ électrique. En effet les zones visées sont celles de transition, où la variation des paramètres magnétiques est importante. Nous avons donc focalisé notre étude sur la zone de "transition fine", encadrée en pointillés verts en figure 4.13, pour laquelle le  $Co$  est partiellement oxydé et pour laquelle nous observons une chute de  $K_s$  ainsi qu'une chute de l'aimantation rémanente (chute des signaux de Hall, du signal en Kerr polaire et du signal  $M_r \cdot t$  en  $VSM - SQUID$ ). Cette zone se situe aux alentours de la position  $23mm$  et est mise en évidence en figure 4.13.

La caractérisation précise ainsi que les mesures réalisées en champ électrique sur cette zone de l'échantillon seront décrits dans le prochain chapitre.

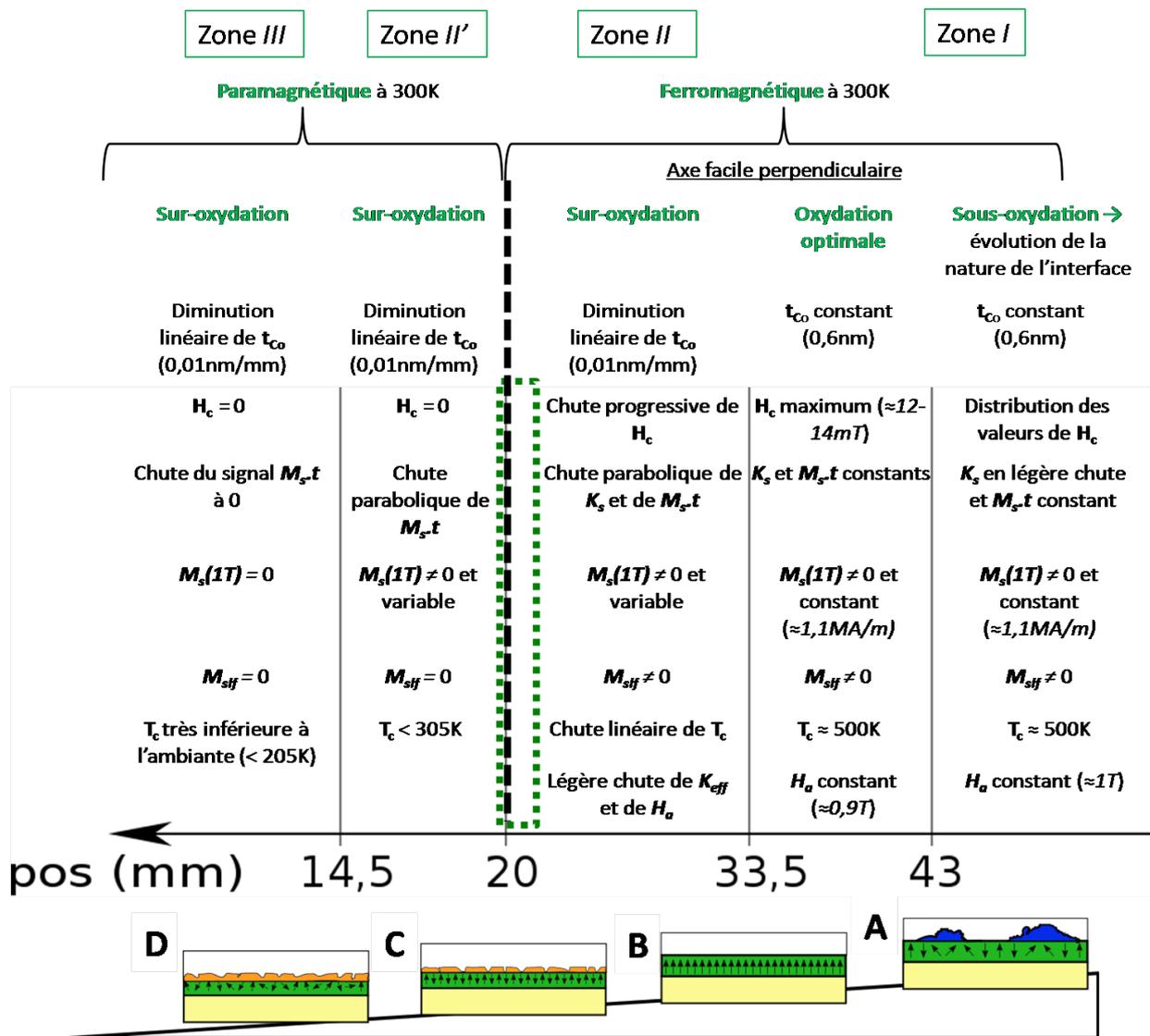


FIGURE 4.13: Description de l'évolution des paramètres magnétiques en fonction de la position sur l'échantillon. Définition des différentes configurations magnétiques à 300K. La zone intermédiaire qui va être à la base de l'étude en champ électrique est mise en évidence (rectangle vert).

# Chapitre 5

## Mise en évidence de domaines apparaissant spontanément dans la zone ultra-fine - Et leur contrôle électrique

La recherche des conditions de fortes variations des propriétés magnétiques de nos échantillons a été le point clé de la réalisation de ces travaux de thèse. Les effets de champ électrique, habituellement assez faibles, peuvent induire de fortes modifications des propriétés (configurations magnétiques) dans les zones de transition (zone de réorientation de spin, zone de transition ferromagnétique / paramagnétique). Nous développerons donc dans ce dernier chapitre un travail de caractérisation sur la zone de l'échantillon sur laquelle nous avons focalisé notre étude en champ électrique, ce travail vient compléter la caractérisation complète de l'échantillon qui a été présentée au chapitre 4. Puis nous ferons un bilan des paramètres affectés par le champ électrique pour cette zone. Nous mettrons finalement en évidence comment la modification de ces paramètres peut être exploitée pour stabiliser ou nucléer des objets magnétiques de types bulles skyrmioniques.

### 5.1 Observation microscopique des domaines

Cette partie résumera donc l'étude qui a été faite sur une zone de la partie ultra-fine présentant des propriétés particulières. Comme mentionné plus haut, cette partie fait le lien direct avec la caractérisation de tout l'échantillon présenté au chapitre 4.

#### 5.1.1 Observation d'une zone de désaimantation de domaines en labyrinthe, par effet Kerr

Un étude d'imagerie le long de l'échantillon nous a permis de mettre en évidence une zone très particulière de notre système, comme indiqué au chapitre 4. Cette zone a été repérée pour des positions proches de  $23mm$  (en gardant les repères de positions utilisés au chapitre précédent). Elle est représentée en figure 5.1. Nous y remarquons une chute du contraste Kerr pour la zone de plus forte oxydation (bas droit de l'image). Un champ magnétique perpendiculaire à la surface de l'échantillon (d'environ  $400\mu T$ ) a d'abord été appliqué pour saturer l'aimantation (même contraste foncé sur toute l'image) puis un pulse de champ magnétique de direction opposée a été appliqué (contraste clair) puis a finalement été ramené à  $0T$  pour la prise d'image.

Un zoom sur la zone où s'effectue la perte du contraste Kerr est aussi représenté en figure 5.1. Nous y observons des domaines périodiques à polarisation (aimantation) alternée, ne présentant

pas d'ordre orientationnel particulier et s'organisant selon une configuration de type labyrinthe. La particularité de cette structure est qu'elle apparaît spontanément à température ambiante, et que la largeur de ces domaines varie le long du gradient d'oxydation. De plus, nous sommes témoins d'un phénomène de fluctuation spatiale de ces domaines, pour une échelle de temps d'observation de l'ordre de la seconde. La période spatiale de ces domaines diminue lorsque nous allons vers la zone de plus forte oxydation, et le phénomène de fluctuations est augmenté. Et ce jusqu'à la forte chute du contraste Kerr où nous atteignons une phase homogène fluctuante. Nous verrons en annexe que ce type de transition est analogue à un processus de fusion (perte progressive du paramètre d'ordre de notre structure, cf annexe G).

La présence de ces fluctuations nous indique que nous sommes dans le cas d'un renversement thermiquement activé des domaines. Ce type de domaines a déjà été observé auparavant pour des gradients de température [99] ou des gradients d'épaisseur de matériau ferromagnétique [100] (*Fe* dans cette étude-là), mais ne l'avait pas encore été dans le cas de système présentant un gradient d'oxydation comme le nôtre.

La formation de ce type de domaines en labyrinthes a été étudiée par Yochelis [101]. Deux phénomènes différents ont été mis en évidence. A la vue de nos images et de l'organisation de ces domaines le long du gradient d'oxydation, nous nous sommes plutôt intéressés au deuxième phénomène mentionné par Yochelis : la formation de la configuration de type labyrinthe par l'instabilité du front des domaines. Cette instabilité engendre la perte d'un ordre directionnel (conduisant plutôt à la formation de bandes droites) au profit d'une configuration de type labyrinthe.

Comme nous l'avons vu au chapitre 4, les propriétés magnétiques de l'échantillon ( $M_s, T_c...$ ) subissent donc de fortes variations sur une gamme très restreinte en position (donc très restreinte en épaisseur de *Co*, pour rappel de pente  $0,01nm/mm$ ). Nous voyons que le passage de régime de propagation dominant à celui de nucléation, avec domaines spontanément désaimantés, (cf figure 5.1 ainsi que chapitre précédent), se fait sur une longueur d'environ  $800\mu m$  le long du gradient d'oxydation. De plus, la zone pour laquelle nous observons des domaines en labyrinthe très faiblement fluctuants jusqu'à atteindre une complète perte du contraste Kerr, n'est longue que de  $400\mu m$ . Nous focaliserons donc notre étude sur cette zone très restreinte de l'échantillon. Nous caractériserons les variations des paramètres magnétiques de manière fine pour cette zone.

Nous allons résumer rapidement comment ont été interprétées ces différentes transitions jusqu'à maintenant ; un résumé bibliographique plus poussé sur la transition de réorientation de spin est développé en annexe G.

## 5.1.2 Transition de type réorientation de spin

Pour certains films magnétiques ultra-minces, nous avons vu précédemment que les moments magnétiques s'orientent préférentiellement perpendiculairement à la surface de l'échantillon, ce qui traduit le fait que l'anisotropie de surface est suffisante pour dépasser le terme d'anisotropie démagnétisante, qui favorise généralement un alignement planaire. Rappelons que c'est la compétition entre ces anisotropies d'interface positives et les termes négatifs de l'anisotropie de forme (dipolaire) qui permet de définir un axe de facile aimantation. Lorsque ces termes opposés deviennent comparables en amplitude, une transition de réorientation de spin peut alors s'opérer au sein du système [99].

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'en approchant de la zone en question ( $23mm$ ),

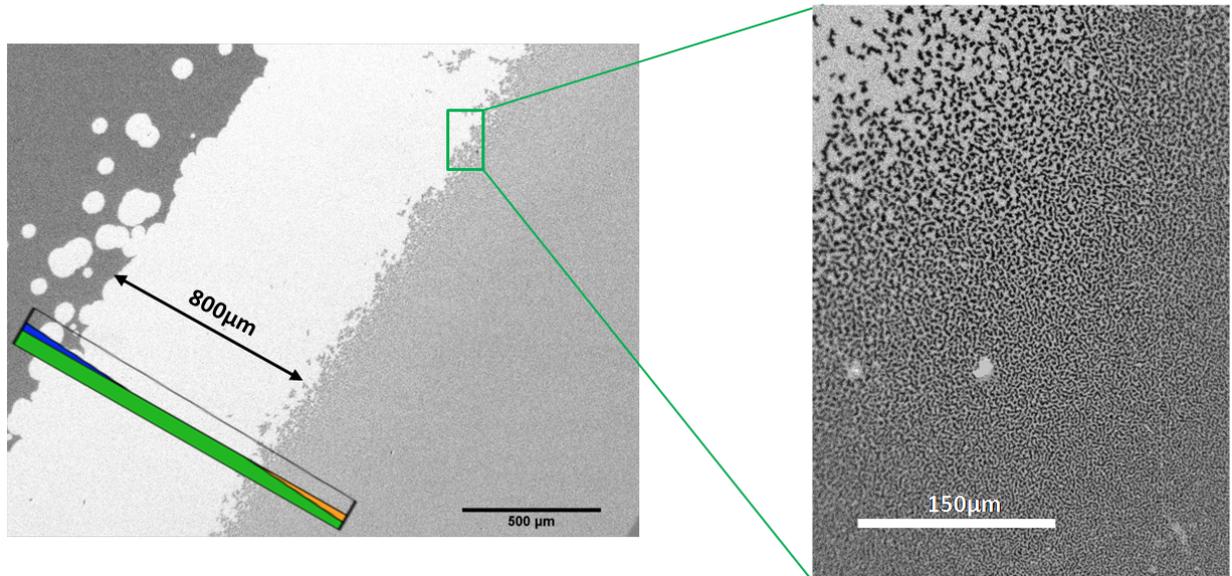


FIGURE 5.1: Gauche : mise en évidence d'une zone de désaimantation sur l'échantillon. Le sens du gradient d'oxydation est rappelé. Droite : zoom sur la zone d'intérêt (rectangle vert). Image prise sans champ magnétique appliqué. *L'évolution de la période de ces domaines en fonction de la position le long de l'échantillon est très analogue à ce qui a été reporté en annexe G pour les transitions de phases en fonction de la température.*

nous avons une diminution des paramètres d'anisotropies de surface ( $K_s$ ) et de forme ( $K_d$  variant comme  $M_s^2$ ). La diminution de ces termes au voisinage de la position sujette à la réorientation de spin, vient modifier la valeur totale d'énergie du système, ce qui permettra de définir la configuration en domaines obtenue. Les domaines en bandes (de polarisation alternée) sont la conséquence d'une compétition entre les interactions de courte portée de type échange et celles de longue portée de type dipolaire (cf chapitre 1). De manière à connaître l'influence de chacun de ces termes (anisotropie, échange, dipolaire) sur la structure en domaines résultante, de nombreuses études ont été réalisées en prenant en compte différentes conditions de stabilité (donc différentes valeurs pour les rapports entre l'interaction d'échange par rapport à l'interaction dipolaire, tout en y incluant un terme variable d'anisotropie). Le résumé de ces différents travaux est donné en annexe G, ainsi qu'en section 1.5.2 du chapitre 1.

Dans le cadre de ma thèse, j'ai choisi d'utiliser le modèle déduit des travaux de thèse de V. Gehanno [31, 102], qui s'est basée sur la méthode utilisée par Kaplan et Gerhing [35], en ajoutant la méthode de l'effet de  $\mu$  (cf description des modèles au chapitre 1, section 1.5.2). Cela se répercute dans la manière de simplifier l'énergie démagnétisante, dont l'expression diffère alors de celle annoncée par Kooy [30] dans le cas où  $\mu$  était pris égal à 1 (cf relation (1.22) au chapitre 1). Une expression très similaire est obtenue pour la taille des domaines désaimantés, le facteur  $\mu$  étant influent uniquement sur le pré-facteur de l'expression (1.23) au chapitre 1. Ainsi nous utiliserons :

$$L = t \cdot \exp\left[\frac{\pi\sigma_\omega}{2tK_d}\right] \cdot \exp[\ln(\pi) - 1 + \mu(0, 5 - \ln(2))], \quad (5.1)$$

pour analyser les tailles des domaines en fonction de l'épaisseur de notre film de  $Co$ .

Nous remarquons que la dépendance  $L(t)$  est alors exponentielle en  $1/t$  comparée à la dépendance en loi puissance qu'avait déduit Kittel [22] pour les fortes épaisseurs. La largeur des

domaines devrait donc augmenter fortement avec la diminution d'épaisseur que présente notre gradient d'oxydation (régime ultra-mince). Or, nous voyons en figure 5.1 que la tendance inverse s'applique dans notre système. Nous verrons dans ce même chapitre que cela est dû à la diminution en parallèle de  $\sigma_\omega$  qui prédomine alors sur la variation d'épaisseur dans cette gamme de positions. Nous avons représenté en figure 5.2, les variations attendues pour  $L$  en fonction de la variation de  $t$  d'une part et de  $\sigma_\omega$  de l'autre. Nous remarquons que la diminution de la taille des domaines ( $L$ ) diminue quand l'énergie de paroi décroît.

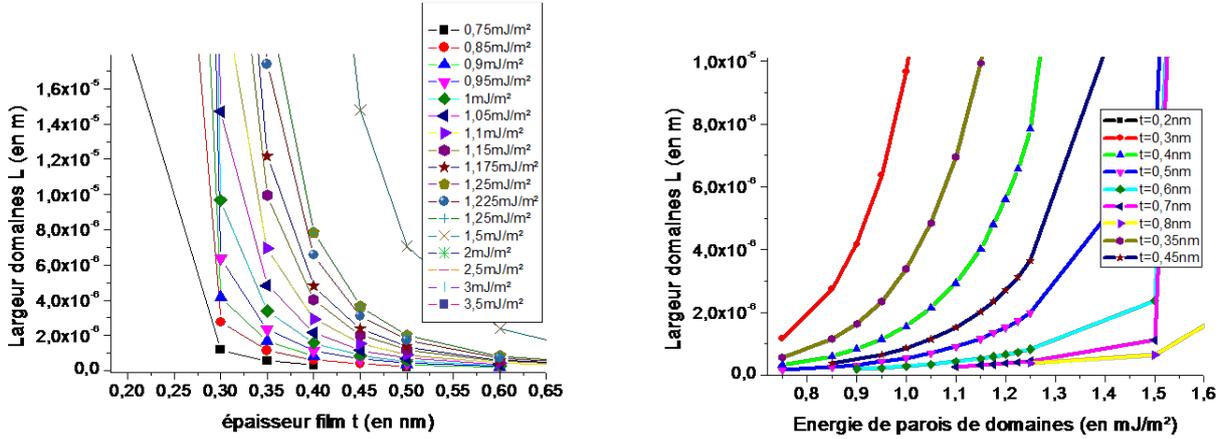


FIGURE 5.2: Variation théorique de  $L$  pour une variation d'épaisseur  $t$ , et pour une variation d'énergie de parois de domaines  $\sigma_\omega$  selon la relation pour les films ultra-minces de Kaplan (cf relation (1.23) au chapitre 1 [35]).

### 5.1.2.1 Nucléation des bulles magnétiques à champ magnétique très faible

Comme dans les prévisions réalisées par Kashuba et al. [103] décrite au chapitre 1, nous avons mis en évidence que notre structure de domaines en labyrinthe se modifiait très rapidement sous l'application de champs magnétiques perpendiculaires très faibles. Seulement quelques centaines de  $\mu T$  ont été utiles à la restauration d'un état saturé dans la direction du champ appliqué (cf fig. 5.3). Kashuba explique cela par le fait que le gain d'énergie atteint par cette structure en multi-domaines, n'est que très faible ; en résulte un champ de saturation dans l'orientation perpendiculaire extrêmement faible. Cela sera confirmé dans la section suivante.

Par ailleurs, des valeurs intermédiaires de champs ( $\approx 150\mu T$  en fig. 5.3) permettaient de stabiliser des structures de type bulles skyrmioniques, dont la densité est variable selon la position dans cette zone restreinte. Une plus forte densité de bulles, alliée à un phénomène d'agitation thermique, est remarquable lorsque l'on progresse vers les épaisseurs les plus fines ( $H_a$  plus faible sur fig. 5.3).

Nous avons donc pu déterminer une esquisse de diagramme de configuration magnétique à partir des observations réalisées en microscopie Kerr. Il est représenté en figure 5.3. La gamme de paramètres magnétiques (qui correspond à une gamme de positions/épaisseurs) pour laquelle nous avons été capables d'observer ces domaines en labyrinthes (ou bulles skyrmioniques sous champ) est très restreinte. Notre diagramme a été construit par rapport au champ d'anisotropie mesuré le long de l'échantillon (cf chapitre 4), et de manière plus précise, dans cette zone ultra-fine. Les mesures précises de ces différents paramètres seront décrites à la section suivante. Nous avons aussi fait apparaître l'épaisseur estimée pour le  $Co$  dans cette zone restreinte. Ceci permet

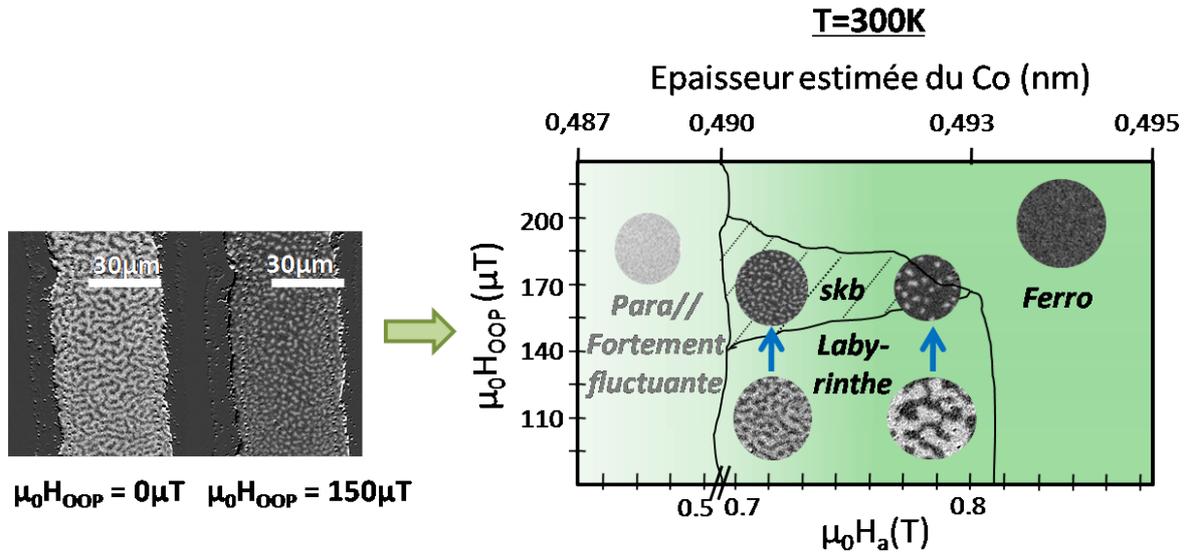


FIGURE 5.3: Diagramme simplifié de configurations magnétiques en fonction du faible champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'échantillon (en  $\mu T$ ) et du champ d'anisotropie ( $T$ ) variable le long de la zone désaimantée (voir sections suivantes). *Ferro*=ferromagnétique, ou saturé et *para*=paramagnétique ou zone à fortes fluctuations avec perte du contraste Kerr et *skb* = bulles skyrmioniques. Diagrammes similaires à ceux établis par Woo [79] et par Yu [81].

de faire une analogie avec le diagramme de transition de phase, établi en fonction de la température d'un système, en annexe G. L'évolution de notre phase fluctuante est donc très similaire à ce qui est généralement observé en température (cf description en annexe G).

## 5.2 Caractérisation précise de cette zone

De manière à pouvoir utiliser le modèle décrivant l'évolution de la taille des domaines en labyrinthe, nous avons réalisé une caractérisation fine de la zone concernée. Un bilan des résultats de profils d'aimantation, de champ d'anisotropie, de champ coercitif, de champ de saturation perpendiculaire et de la période des domaines sont résumés en figure 5.4 et 5.5. Ils sont d'abord représentés à l'échelle de l'échantillon complet et viennent compléter les mesures du chapitre 4 (fig. 5.4), décrit au chapitre précédent, puis un zoom de ces paramètres est mis en avant pour la zone d'intérêt (sur environ  $1mm$ ) en figure 5.5. Ils seront commentés dans les paragraphes suivants. Ici, nous ferons l'approximation que le signal mesuré en Kerr polaire est proportionnel au signal  $M_s.t$ ; la saturation du système désaimanté étant obtenue pour de très faibles champs magnétiques perpendiculaires appliqués, nous prendrons ici  $M_{s\lfloor f} = M_s$  (cf chapitres 1 et 4 pour la distinction entre ces termes). Cette zone se situe à la transition entre les zones *III* et *II'* décrites au chapitre précédent.

### 5.2.1 Estimation du profil d'aimantation et du champ coercitif ( $H_c$ ) à température ambiante

Sur l'exemple des mesures régulières  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  du chapitre précédent où nous avons représenté l'évolution de  $H_c$  tous les  $500\mu m$  (figure 4.3) ainsi que l'évolution du saut du signal Kerr tous les  $mm$  (figure 4.22) sur tout l'échantillon (groupé avec les mesures du chapitre

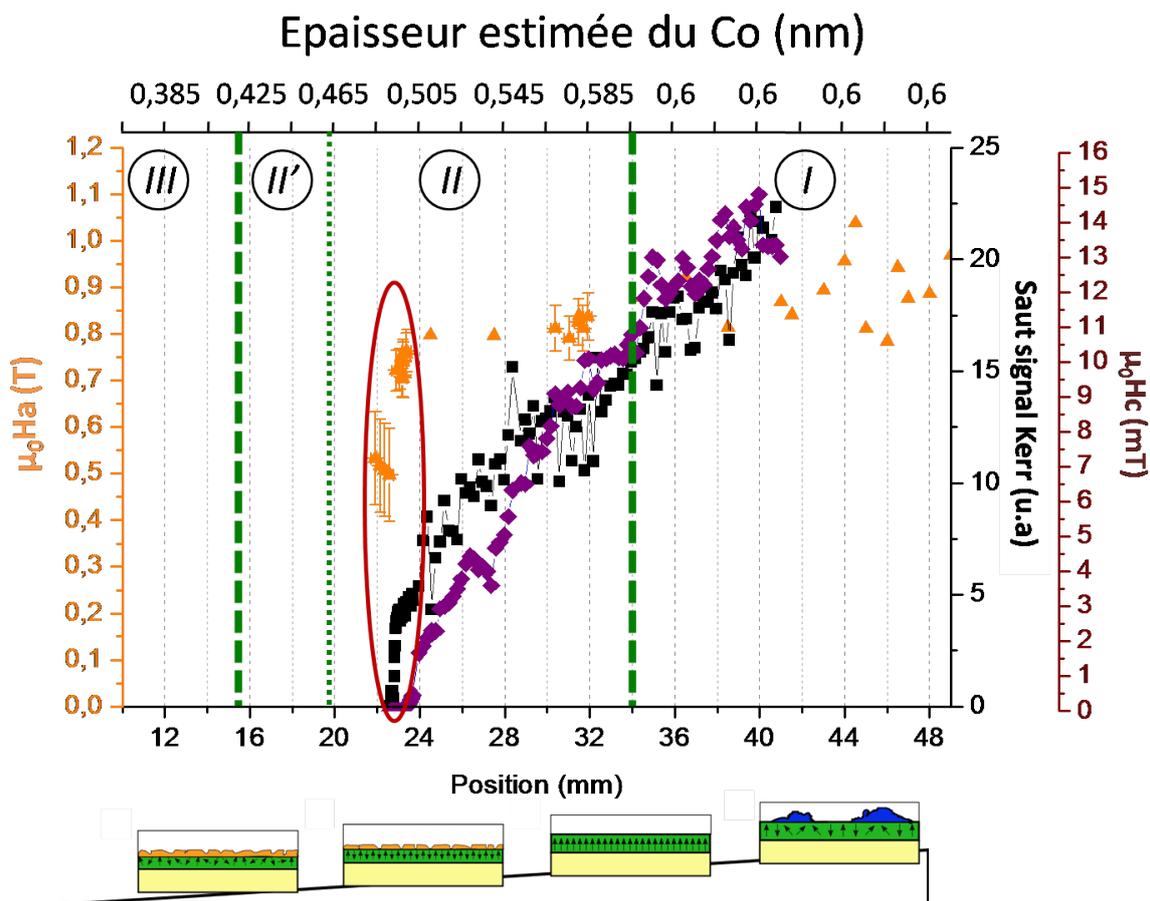


FIGURE 5.4: Extraction du saut du signal en Kerr polaire et de la valeur du champ coercitif  $\mu_0 H_c$  ( $mT$ ), ainsi que des valeurs extraites pour le champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a$  ( $T$ ). Mise en évidence de la zone ultra-fine (entourée en rouge), pour laquelle des mesures très précises en position ont été réalisées. Selon la technique d'extraction et la calibration utilisée pour le champ planaire, une erreur de 6% a été définie pour l'extraction du champ d'anisotropie en utilisant les mesures MOKE (cf annexe J). Celles-ci sont représentées directement pour les points concernés. Cette figure regroupe les mesures du chapitre 4 et vient les compléter en y ajoutant les mesures de Kerr à des positions très rapprochées réalisées à la transition entre III et II'.

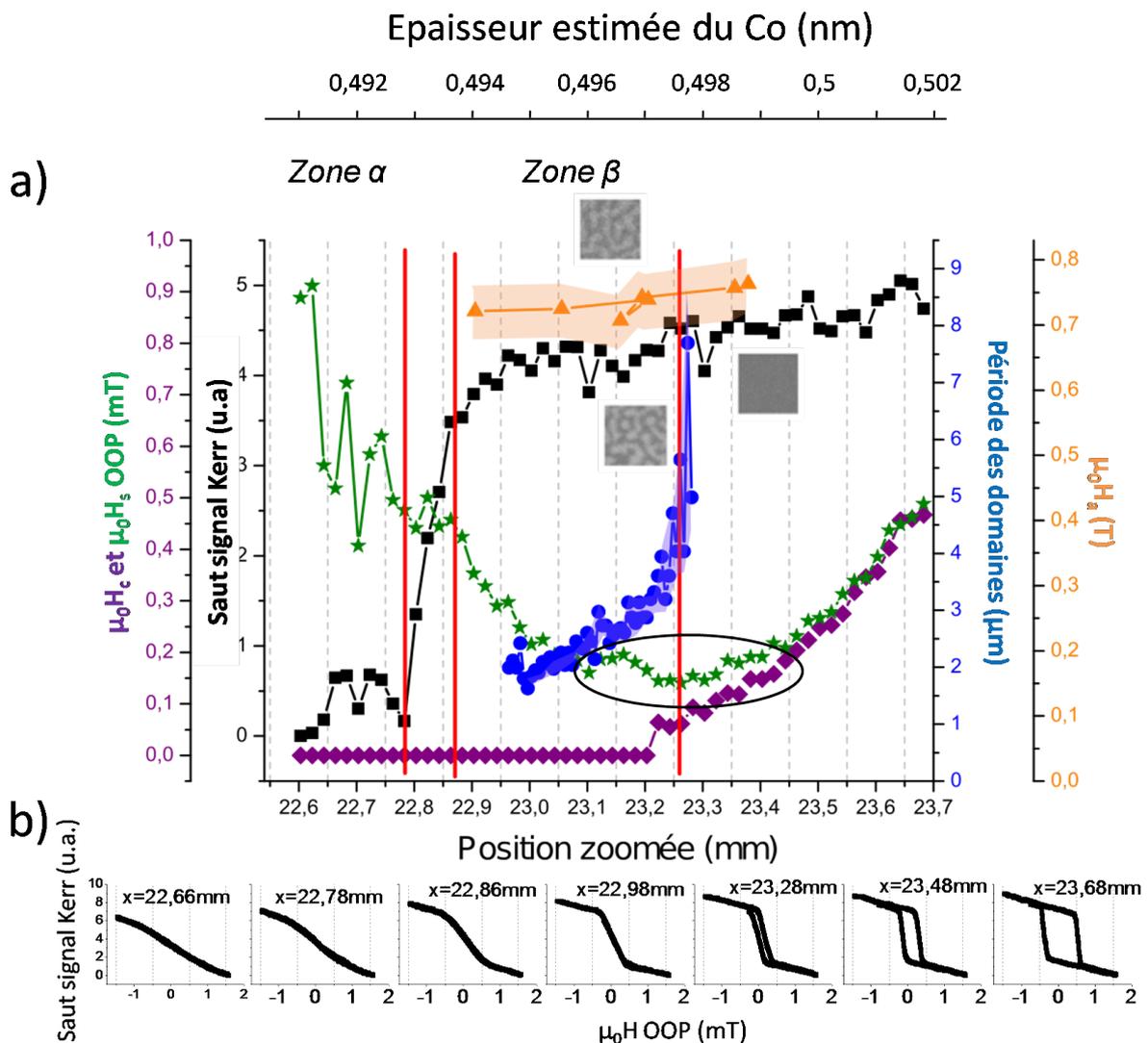


FIGURE 5.5: a) Zoom de la figure 5.4 en se focalisant sur la zone ultra-fine des domaines en labyrinthe. Le saut du signal Kerr polaire (carrés) est représenté, ainsi que celui du champ coercitif (losanges) pour des pas de  $20\mu\text{m}$ . Sont aussi représentés la période des domaines de désaimantation (en  $\mu\text{m}$ , cercles) et le champ d'anisotropie de cette zone (triangles). Le champ de saturation perpendiculaire  $\mu_0 H_s \text{ OOP} (\text{mT})$  est aussi représenté (étoiles).

b) Cycles Kerr  $M_z(H_{\text{OOP}})$  bruts associés (sans retrait de la pente Faraday).

Deux zones sont mises en évidence sur le graphe : la zone  $\beta$  est celle où sont observés les domaines en labyrinthe ( $\mu_0 H_c$  quasiment nul et cycles Kerr bien carrés); et la zone  $\alpha$  où nous avons une perte du contraste Kerr due à la forte agitation thermique du système (passage pouvant s'apparenter à une transition de type ferro-paramagnétique). La zone encerclée en noire met en évidence une zone optimale d'anisotropie perpendiculaire qui sera décrite en section 5.2.2.

4), nous avons réalisé un scan plus fin à la transition des zones *III* et *II'* (zone de désaimantation) en utilisant des fenêtres de sélection de  $20\mu m$ . A nouveau les positions utilisées sont équivalentes à celles prises en compte au chapitre précédent.

Le scan précis groupant les mesures éloignées de la zone ultra-fine (pas de  $500\mu m$ ) avec nos mesures précises dans la zone en question (pas de  $20\mu m$ ) est représenté en figure 5.4. Nous y remarquons la chute à 0 de  $H_c$ , ainsi qu'une chute du contraste Kerr très abrupte (aux alentours de  $22.5mm$ ). Notons que la méthode de mesure pour la zone ultra-fine a été quelque peu modifiée. En effet, nous avons mesuré en appliquant le champ magnétique sans les pôles de fer (entrefer) présents lors des autres mesures (cf section 3.3.1 au chapitre 3). Cela induit une légère discontinuité dans la valeur de  $H_c$  (passage d'une valeur de  $\mu_0 H_c$  de  $1,5mT$  à  $0,6$ ) aux alentours de  $24mm$  (calibration différente pour le champ perpendiculaire appliqué). Cependant, cela a permis de ne pas être gênés par le champ rémanent des pôles lors de nos mesures fines.

En faisant un zoom sur cette zone (fig. 5.5), nous observons que la chute du contraste Kerr est très brutale. En effet, le signal Kerr reste globalement constant lors de la chute de la coercivité à 0. Puis, sur une longueur de seulement  $80 - 100\mu m$ , le contraste Kerr chute à 0, marquant la zone de transition d'un état de domaines en labyrinthe à un état très fluctuant avec perte du contraste Kerr (zone  $\alpha$ ), qui pourrait s'apparenter à un passage vers un état paramagnétique (la possibilité d'une réorientation planaire a aussi été évoquée dans la partie précédente). Cette transition est qualifiée de brutale, car si l'on considère la variation d'épaisseur envisagée, un déplacement de  $80\mu m$  le long de notre échantillon, représenterait une chute de l'épaisseur de  $Co$  de seulement  $8 \cdot 10^{-4} nm = 0,8pm$ . Nous devons préciser que cela représente bien une épaisseur effective en prenant en compte la pente du gradient annoncée lors du dépôt ( $0,01nm/mm$ ). Il est difficile de s'imaginer une pente si régulière sur une si faible gamme de position. De nombreux facteurs supplémentaires, autres que l'épaisseur de ferromagnétique, doivent donc être considérés pour justifier de cette transition soudaine. Pour une température de Curie proche de l'ambiante, tout varie très rapidement.

Dans la zone  $\beta$  nous remarquons une décroissance linéaire avec l'épaisseur de  $Co$  pour l'évolution de  $M_s \cdot t$ . Puis, une forte chute du signal Kerr (donc de  $M_s \cdot t$ ) est obtenue pour les épaisseurs plus faibles (zone  $\alpha$  en fig. 5.5).

Quant à  $H_c$ , nous remarquons que sa chute se repère pour des épaisseurs plus importantes (s'annule à environ  $23,2mm$  (figure 5.5)). Le régime pour lequel nous sommes témoins de l'apparition de la structure en domaines en labyrinthe est donc très particulier et finalement assez reconnaissable de par l'aspect des cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$ , car cela concerne les cycles très carrés, de coercitif nul ou quasiment nul ( $<0,06mT$ ) pour lequel le signal Kerr reste important. La chute de ce signal Kerr mène à une configuration considérée comme paramagnétique où les fluctuations sont trop importantes par rapport à la résolution temporelle de notre microscope.

Outre l'approximation que nous choisissons d'utiliser pour relier notre signal Kerr, avec le signal d'aimantation  $M_s \cdot t$ , il est important de noter que malgré cette chute très soudaine du signal d'aimantation à faibles champs appliqués, la valeur de l'aimantation à saturation ( $M_s(1T)$ , mesurée au  $VSM - SQUID$ ) reste forte pour ces positions (cf chapitre précédent). Nous perdons donc en rémanence (du fait de la désaimantation progressive de notre échantillon, ainsi que de l'amplification des fluctuations thermiques), mais une aimantation est restaurée sous l'application d'un champ fort (de l'ordre de  $1T$ , cf figure 4.8 du chapitre précédent).

Nous allons maintenant déduire de ces cycles la valeur de champ permettant la saturation de

l'échantillon en orientation perpendiculaire  $H_{s\ OOP}$  lorsque le champ coercitif est nul. Cet axe étant l'axe de facile aimantation, la saturation s'opère pour de très faibles champs (cf figure 5.5).

### 5.2.2 Mesures régulières du champ de saturation hors plan ( $H_{s\ OOP}$ )

Les cycles réalisés de manière rapprochée et régulière (cf figure 5.5) nous ont permis de nous intéresser à l'évolution d'une autre caractéristique d'un matériau magnétique : le champ de saturation perpendiculaire  $H_{s\ OOP}$ . Il représente le champ utile à saturer l'échantillon dans la direction perpendiculaire, en partant d'un état désaimanté en domaines.

En utilisant les exemples de cycles représentés en figure 5.5, nous prenons un champ de saturation égal à  $H_c$  moyen (moyenne de  $H_c$  positif et  $H_c$  négatif), dans le cas des cycles carrés, encore ouverts ( $H_c$  non nul). Puis, pour ce qui est des cycles fermés (à  $H_c$  nul), nous relevons les champs d'intersection entre le signal central et les droites à forts champs (positifs et négatifs) et en déduisons une valeur moyenne (cf exemple de traitement en fig. 5.6).

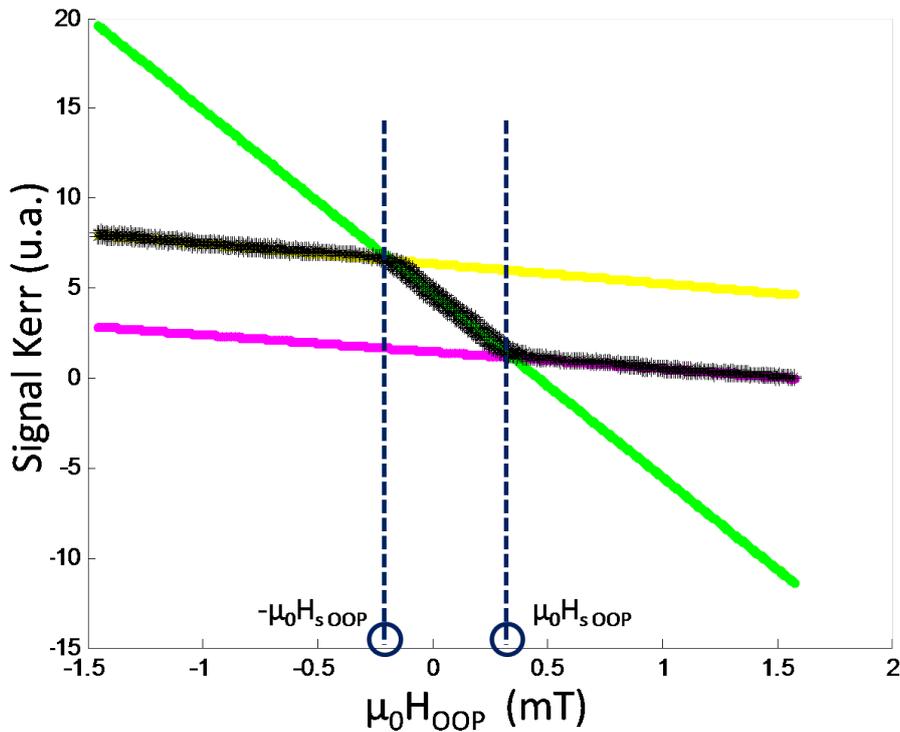


FIGURE 5.6: Exemple d'extraction du champ de saturation perpendiculaire  $H_{s\ OOP}$ , à partir d'un cycle Kerr brut. Il est donné par la moyenne des champs d'intersection entre les droites extraites à forts champs (positifs et négatifs) et la droite d'extrapolation du signal central.

Grâce à cela nous avons été capables de déterminer une zone ne présentant pas d'hystérésis (coercitif nul), mais avec une forte susceptibilité ( $H_{s\ OOP}$  très faible) que l'on pourrait définir comme une zone optimale pour l'anisotropie perpendiculaire (cf zone encadrée dans figure 5.5). L'échantillon est saturé à aimantation perpendiculaire avec des champs de saturation inférieurs à  $250\mu T$  pour cette zone. Cette région correspond justement à la zone d'observation des domaines en labyrinthe. Elle se manifeste sur environ  $400\mu m$ , tout comme l'observation de ces domaines. La mesure du champ de saturation perpendiculaire est donc aussi un moyen rapide pour arriver à

cibler les zones potentielles où nous pourrions avoir ce type de domaines.

Nous pouvons aussi remarquer que ce champ de saturation réaugmente dans la zone  $\alpha$ , une fois la zone de désaimantation dépassée (pour des positions  $< 22, 9mm$ ). Il est donc plus difficile de saturer l'échantillon perpendiculairement et cela pourrait être une forme d'expression de la transition vers l'état paramagnétique mentionné plus haut, ainsi qu'au chapitre 4. Ou bien, nous pourrions supposer que l'échantillon subit une réorientation planaire dans cette zone  $\alpha$ , que nous avons déjà supposée pour cette zone au début de ce chapitre, ainsi qu'en annexes G et H. Cependant, ces valeurs de champs restent tout de même très faibles (de l'ordre du  $mT$ ), cela peut donc aussi être dû à l'erreur d'extraction, qui se trouve être plus importante dans cette zone de par la forme arrondie des cycles  $M_z(H_{OOP})$ . Nous pourrions aussi avoir un mélange de domaines planaires et perpendiculaires sans aller jusqu'à la réorientation. Les graphes représentant la possible expression d'une composante planaire  $M_x$  déduite le long de l'échantillon sont présentés en annexe H.

Nous avons donc déterminé une manière simple pour repérer la zone spontanément désaimantée qui sera au cœur de notre étude grâce au champ de saturation perpendiculaire  $H_s_{OOP}$  extrait des cycles Kerr réguliers, très faibles dans la zone de désaimantation. De manière à pouvoir raisonner avec le modèle de V. Gehanno [31, 102] décrit dans au chapitre 1, il nous faut maintenant exprimer l'évolution au sein de cette zone de grandeurs utiles au modèle. Nous montrerons donc dans les paragraphes suivants l'évolution que nous avons pu déduire pour  $\mu_0 H_a$  (et donc  $K_{eff}$ ) ainsi que pour la largeur des domaines le long de cette zone (cf fig. 5.5). La connaissance de ces variations d'anisotropie, d'aimantation, et de largeurs de domaines le long de l'échantillon, nous permettra de définir l'énergie surfacique de paroi de domaine (définie dans le paragraphe précédent), et nous en déduirons une valeur du facteur  $DMI$ ,  $D(pos)$ , en fonction de la position le long de notre zone ultra-fine.

### 5.2.3 Mesure du champ d'anisotropie et déduction de l'anisotropie effective $K_{eff}$

Le principe de mesure a été le même que pour le chapitre précédent. Nous avons réalisé des cycles  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$  en configuration polaire. Cette fois-ci, nous avons scanné régulièrement la zone en question en utilisant des fenêtres de sélection de  $220\mu m$  ou de  $160\mu m$  selon les échantillons mesurés. Nous avons ainsi pu déduire des valeurs rapprochées pour le champ d'anisotropie et donc pour l'anisotropie effective  $K_{eff}$  (connaissant le profil linéaire de  $M_s$  décrit au paragraphe précédent). Grâce à cela, nous avons pu établir une relation  $K_{eff}(pos)$  précisément pour cette zone de l'échantillon (avec  $pos$ , la position en  $mm$  sur l'échantillon).

De manière à être précis dans nos conclusions, nous avons à nouveau extrait les valeurs de champs d'anisotropie  $H_a$  de plusieurs manières (ajustement avec le modèle de renversement de type Stoner-Wohlfarth ( $SW$ ) et travail d'intégration de la courbe de la composante planaire  $M_x$ , les méthodes sont présentées en annexe D) comme cela avait été réalisé au chapitre précédent. Les champs ainsi extraits sont groupés avec les valeurs déduites au chapitre précédent (cf fig. 5.4). Nous avons réalisé les fits  $SW$  seulement pour les positions pour lesquelles l'allure du cycle le permettait (donc avec une saturation proche de l'ordre de nos champs maximum applicables). De même, nous avons conservé les valeurs déduites de la méthode d'intégration pour lesquelles la différence entre l'aire pour les champs positifs et celle pour les champs négatifs était assez faible ( $< 15\%$ ).

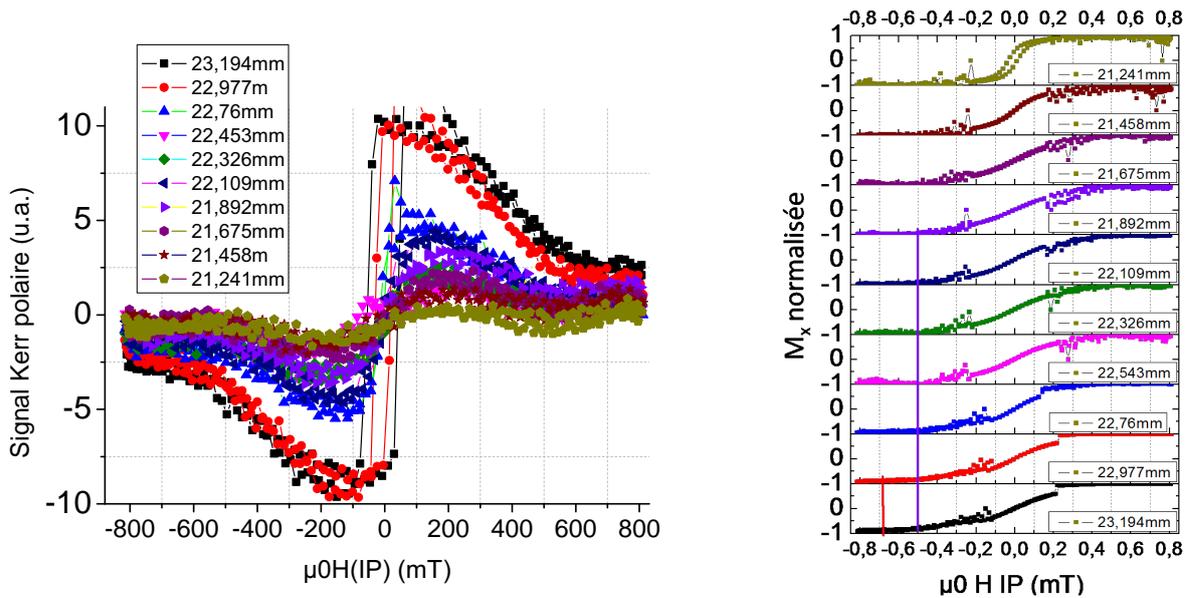


FIGURE 5.7:

Gauche : Cycles rapprochés  $M_z(H_{IP})$  - pas de  $217\mu m$ , ils ont été centrés autour de 0. La différence de valeur de signal à fort champ est lié à la calibration de la bobine (saturation à fort courant appliqué), ainsi qu'à la saturation non atteinte pour les positions les plus élevées.

Droite : Cycles rapprochés  $M_x(H_{IP})$ , déduits de  $M_z$  - pas de  $217\mu m$ . La partie centrale est l'ajustement réalisé à faible champ par un profil de type *Arctan*. Cet ajustement est décrit au chapitre 4, ainsi qu'en annexe D. *Un relevé manuel (approximatif) de  $\mu_0 H_a$  est représenté (trait vertical) pour deux positions.*

La tendance générale qui se distingue (figure 5.7) nous ramène à la conclusion du paragraphe précédent. Le champ d'anisotropie décroît très légèrement le long de l'échantillon jusqu'à subir une chute abrupte lorsque l'on se rapproche de la position de transition paramagnétique (très fluctuante, avec chute du contraste Kerr). Les cycles  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$  témoignant de cette chute soudaine du signal Kerr, ainsi que du champ d'anisotropie sont représentés en figure 5.7. Cette chute des paramètres est très soudaine (remarquable entre deux mesures seulement éloignées de  $220\mu m$ ), ce qui confirme bien les déductions du paragraphe précédent. A nouveau, nous pourrions donc estimer une allure pour les variations de  $H_a$  et de  $K_{eff}$ , jusqu'à la position pour laquelle nous observons la chute abrupte (à 0) de la plupart des paramètres (zone  $\alpha$  en fig. 5.5). En effet, les méthodes utilisées pour extraire  $H_a$  (fit *SW* et méthode d'intégration de la courbe de  $M_x$ ) ne peuvent plus s'appliquer lorsque les cycles subissent ce changement soudain d'allure (donc pour des positions inférieures à  $22,8mm$  dans notre cas). Le fit est alors impossible à réaliser car l'allure des cycles est trop éloignée de celle généralement obtenue lors d'un renversement cohérent de l'aimantation (*Le relevé à l'œil fait pour la position 21,892mm en figure 5.7 droite n'est qu'un repère pour témoigner de la forte chute de  $\mu_0 H_a$  dans la zone  $\alpha$ .*

**Allure de  $\mu_0 H_a$  dans la zone désaimantée :** Une allure plutôt linéaire est observée pour la diminution de  $\mu_0 H_a$  avec la position, jusqu'à atteindre la zone  $\alpha$  (position *pos* proche et inférieure à  $22,8mm$  en fig. 5.5), avant cette chute très abrupte. Remarquons donc que la chute des paramètres magnétiques se fait par étapes (en position) dans cette zone. Nous sommes d'abord témoins de l'annulation de la coercivité, puis du signal Kerr, et enfin, nous assistons à la chute de l'anisotropie. La chute de l'anisotropie étant bien plus soudaine que la chute régulière de la coercivité le long de l'échantillon, il ne sera pas correct de lier ces deux paramètres linéairement

( $\mu_0 H_a = cste \times \mu_0 H_c$ ) pour cette gamme d'épaisseur.

**Allure déduite pour  $K_{eff}$  dans la zone de désaimantation :** Grâce aux mesures de champ d'anisotropie et au profil linéaire déduit pour  $M_s$  en section 5.2.1, nous sommes en mesure de déduire l'allure de  $K_{eff}$  le long de l'échantillon. Sont représentés en figure 5.8 les variations déduites pour  $K_{eff}$  et  $K_{eff} \cdot t$  le long de l'échantillon, groupées avec les mesures présentées au chapitre 4. La chute de  $K_{eff} \cdot t$  dans cette zone (ultra-fine) pourrait signifier qu'une réorientation de l'aimantation dans le plan de l'échantillon est à envisager pour cette zone. Cependant, cette non-linéarité du signal  $K_{eff} \cdot t(t)$  a déjà été observée dans de nombreux systèmes pour des épaisseurs de ferromagnétique (métaux de transition) très faibles [15] (cf zone où  $t < 7\text{\AA}$  en fig. 1.6 au chapitre 1 [14]). Plusieurs explications peuvent être avancées pour justifier de cette diminution, la réorientation planaire étant l'une d'entre elles. Nous pouvons aussi imaginer que pour de très faibles épaisseurs, le matériau n'est plus continu, mais sa croissance se présenterait plutôt sous forme de nombreux îlots répartis sur la couche sous-jacente. La surface de contact entre le matériau ferromagnétique et le métal lourd inférieur en est donc réduite, ce qui conduit à une diminution globale de l'anisotropie effective [15]. D'autre part, Johnson expose dans sa revue le phénomène d'interdiffusion de ces deux couches, qui peut être une autre explication possible. Pour des épaisseurs extrêmement faibles, l'épaisseur de la couche magnétique peut devenir comparable à la longueur de diffusion entre les deux métaux, ce qui peut venir fortement influencer les propriétés magnétiques.

Finalement, un dernier argument est donné par Johnson et concerne la diminution de la température de Curie pour les matériaux magnétiques à faibles épaisseurs, il mentionne que cela peut venir jouer un rôle sur les mesures réalisées à température ambiante, ce qui est notre cas. Nous avons vu au chapitre précédent, que la  $T_c$  est proche de  $305K$  pour la position  $20mm$ . La zone désaimantée présente donc une température de Curie tout juste supérieure à la température de mesure, d'où la chute soudaine de tous les paramètres magnétiques en approchant cette zone.

De nombreux facteurs influent sur cette évolution de  $K_{eff} \cdot t(t)$ , comme l'épaisseur et la nature du métal sous-jacent, ou encore les conditions de dépôt. Les valeurs de  $K_{eff}$  ainsi déduites sont très dispersées et il est donc difficile de faire un travail de comparaison quantitatif avec les systèmes décrits dans la littérature [15, 104].

L'erreur par rapport à la valeur moyenne calculée pour les valeurs de  $K_{eff}$  extraites par les différentes méthodes, en traitant les cycles  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$ , a été estimée en moyenne à  $\pm 20\%$  dans la zone ultra-fine spontanément désaimantée (cf annexe J). L'estimation de cette erreur vient de l'erreur considérée pour les mesures de  $\mu_0 H_a$  et de  $M_s$ . Plus de précisions sur l'extraction des valeurs d'erreurs absolues pour les différents paramètres mesurés, sont données en annexe J. Nous devons prendre en compte cette erreur systématique pour les extractions de valeurs d'anisotropies dans les paragraphes suivants.

Nous allons maintenant revenir sur l'étude en température décrite au chapitre précédent, en y apportant quelques précisions.

## 5.2.4 Influence de la variation de $T_c$ sur la réorientation

Comme déjà évoqué au chapitre précédent, ainsi qu'à plusieurs reprises dans ce chapitre, le système obtenu de domaines en labyrinthe présentant une évolution très rapide de leur dimension et de leur dynamique est un effet direct de la diminution de la  $T_c$  de l'échantillon. Au chapitre

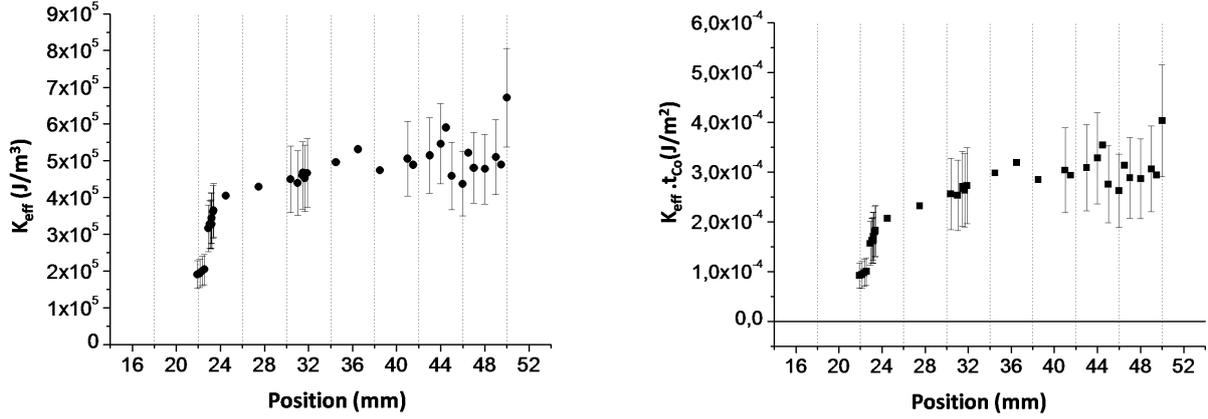


FIGURE 5.8:

Gauche : Valeurs moyennées de  $K_{eff}(J/m^3)$  déduites des mesures de  $H_a$  et  $M_s$ . Les points possédant une erreur importante sont ceux qui ont été déduits des mesures en Kerr polaire avec un champ appliqué parallèlement à la surface (erreur importante car saturation incomplète, cf chapitre 3).

Droite : Valeurs de  $K_{eff} \cdot t_{Co}(J/m^2)$  en utilisant la variation d'épaisseur déterminée au chapitre précédent. Cette figure est bien semblable à la zone fine décrite en figure 1.6 au chapitre 1. Les barres d'erreur correspondent à la somme des erreurs relatives sur  $K_{eff}$  et sur  $t_{Co}$ .

précédent, nous avons vu que cette chute se fait de manière plutôt linéaire tout au long de l'échantillon. La variation abrupte des différents paramètres magnétiques est donc obtenue lorsque la  $T_c$  de cette zone précise tend vers la température de mesure ( $RT$ ).

La diminution de  $T_c$  le long de l'échantillon étant linéaire en position (donc avec  $t_{Co}$ ), il nous est donc possible de déterminer une analogie entre le fait de mesurer une zone précise de l'échantillon en température, et le fait de se déplacer le long de l'échantillon. Nous sommes alors témoins des mêmes effets. Cela est donc à nouveau un atout de notre échantillon, car nous pouvons raisonner sur un seul échantillon, en ne mesurant seulement qu'à température ambiante, puis en faisant des déductions par rapport aux différents régimes observés le long de l'échantillon.

Ici, nous comparerons les valeurs de  $T_c$  déduites de deux hypothèses différentes. En effet, nous avons extrait  $T_c$  en utilisant le modèle de Kuz'Min cité au chapitre précédent, en cherchant à annuler l'aimantation à saturation  $M_s(1T)$  mais aussi l'aimantation à champ magnétique très faible  $M_{s\text{ }lf}$ . Nous remarquons que nos deux valeurs de  $T_c$  dans la zone désaimantée (position proche de  $23mm$ ) sont très proches de ce qu'avaient mesuré Metaxas et al. [96] pour une épaisseur de  $Co$  de  $0,5nm$  :  $415K$ , pour une valeur de  $M_s$  très proche de celle de notre étude. Nous avons vu qu'à partir de la zone désaimantée, puis pour les épaisseurs plus fines, nous avons annulation de  $M_{s\text{ }lf}$  tout en conservant une aimantation à saturation assez forte. Dans notre étude, nous avons choisi de définir  $T_c$  par rapport à l'annulation de  $M_{s\text{ }lf}$  (cf chapitre 4), car nous utilisons de faibles champs magnétiques pour nos observations et pour nos mesures Kerr. La saturation étant quasiment instantanée (pour de très faibles champs magnétiques appliqués), la chute d'aimantation que nous sondons avec nos cycles en Kerr polaire rapprochés est obtenue à faibles champs et a été considérée comme variant comme  $M_s$  pour ce chapitre. Dans le cas des couches très fines, d'autres études avaient aussi réalisé l'extraction de  $T_c$  en cherchant l'annulation de l'aimantation sous faibles champs magnétiques [42, 105, 106]. Kerkmann et al. viennent même confirmer notre approximation en remarquant que pour des gammes de températures proches de la  $T_c$  du maté-

riau, on peut mettre en évidence le fait que l'aimantation spontanée microscopique, donc mesurée très localement, correspond à l'aimantation rémanente macroscopique [106] (cf chapitre 1 pour la définition de ces termes). A l'inverse, Chiba et al. [44] ont plutôt extrait leurs valeurs de  $T_c$  en cherchant à annuler le signal d'aimantation à saturation. Dans ses travaux de thèse, Bergeard fait bien la différence entre l'annulation du signal à faibles champs et l'annulation du signal à saturation (à forts champs) [92, 99]. Sont représentées en figure 5.9 les températures de Curie extraites des deux manières pour notre échantillon. La décroissance globale est commune aux deux méthodes, mais nous sommes témoins d'un décalage d'environ  $5\text{mm}$  sur l'échantillon pour l'égalisation de la  $T_c$  avec la température de mesure ( $300\text{K}$ ). Cette zone tout juste voisine de la zone des domaines en labyrinthe ( $pos < 22, 9\text{mm}$ ) est donc considérée comme une zone intermédiaire qui peut être définie comme une zone de transition (la réorientation planaire étant l'une des hypothèses) pour laquelle de nombreux modèles ont été présentés (cf paragraphe 5.1.2 et annexes G et H).

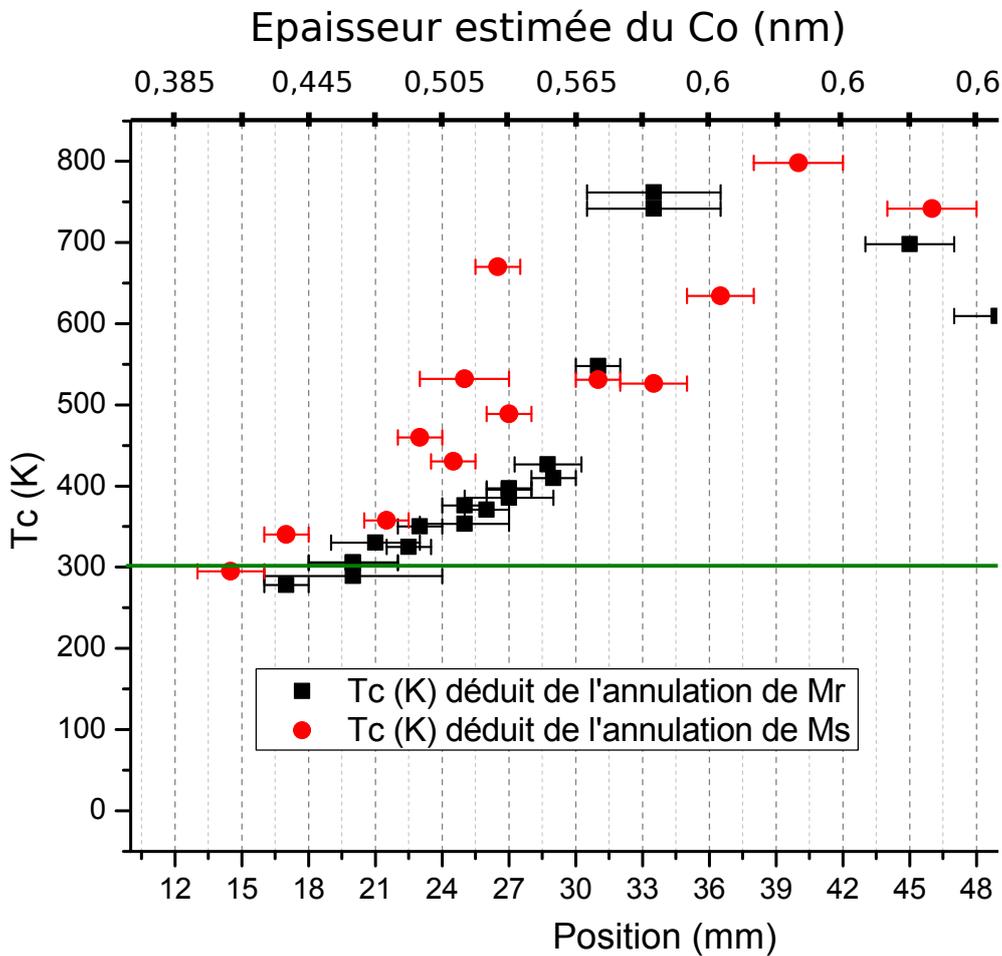


FIGURE 5.9: Comparaison des valeurs de  $T_c$  déduites en annulant l'aimantation à saturation (extraite à  $1T$ ) et l'aimantation à la rémanence (extraite pour un champ quasiment nul). (Les barres d'erreurs sont données en positions et correspondent à la largeur des morceaux mesurés au VSM – SQUID).

Kerkmann assiste aussi à une chute de l'aimantation rémanente pour une température plus faible que celle de l'annulation de  $M_s$ , et détecte bien la présence d'une structure en domaines pour des températures légèrement plus faibles que la  $T_c$  (qu'il déduit de l'annulation de  $M_r$ ), tout comme dans notre système. Il qualifie la restauration d'une aimantation sous fort champ pour

des températures supérieures à la  $T_c$  comme le fait que le système se comporte alors comme un aimant d'Heisenberg à deux dimensions<sup>1</sup>. La configuration atteinte ne serait donc pas encore paramagnétique. Un ordre magnétique est restauré sous champ, mais pas à longue portée.

De son côté, Bergeard [92] envisage l'expression d'une composante planaire de l'aimantation de plus en plus importante entre la température dite de fusion  $T_m$ , où il remarque une perte du contraste Kerr et la température de Curie  $T_c$  pour laquelle le signal d'aimantation à saturation à fort champ s'annule. Il qualifie cette phase de phase isotrope fluctuante (cf section 5.1.2 et annexe G).

Comme déjà mentionné, les tracés du profil déduit pour la composante planaire de notre système sont décrits en annexe H, et nous retrouvons dans notre système les comportements décrits par Kerkmann et par Bergeard.

Nous allons maintenant nous focaliser sur la zone ultra-fine présentant les domaines en labyrinthe, et exprimer les énergies en jeu pour extraire les valeurs d'énergies de parois et  $DMI$ .

## 5.2.5 Extraction de la taille des domaines en fonction de la position sur l'échantillon

Cette section permettra de déduire les termes d'énergie utiles à la compréhension de la structure en domaines. Le modèle utilisé pour déduire l'énergie surfacique de paroi de domaine, à partir des valeurs de largeur de domaines  $L$  a été énoncé auparavant (cf relation 5.1 en section (5.1.2) [31], que l'on peut réécrire :

$$\sigma_\omega = \frac{\mu_0 \cdot M_s^2 \cdot t}{\pi} \cdot \ln \left( \frac{L}{t \cdot \exp(\ln(\pi) - 1 + \mu \cdot (0,5 - \ln(2)))} \right). \quad (5.2)$$

### 5.2.5.1 Technique

Les exemples de cycles utilisés pour déduire les profils de  $M_s$  et de  $\mu_0 H_a$  résumés en figure 5.5 sont donnés en figure 5.10. L'image utilisée pour extraire la période des domaines ( $2L$ ) est également représentée en figure 5.10 a. Comme mentionné en annexes G et J, la période de ces domaines est déduite de la transformée de Fourier de l'image. Les images ont été divisées en fenêtres de 20 pixels de côté (équivalent à  $6,45 \mu m$ ) pour définir une valeur de période en fonction de la position le long de la zone désaimantée. La transformée de Fourier 2D de ces fenêtres donne un anneau diffus représenté en figure G.4 en annexe G, dont le diamètre est inversement proportionnel à la valeur de la période des domaines. Dans notre étude, nous avons réalisé une transformée 1D pour chacune des 20 lignes de ces fenêtres et avons fait la moyenne des périodes ainsi obtenues.

Nous avons ainsi déduit une période  $2L$  de tailles de domaines proche de  $5 \mu m$  au départ de cette zone désaimantée, puis qui diminue très fortement le long de la zone, pour atteindre une valeur d'environ  $2 \mu m$ ,  $300 \mu m$  plus loin. Ceci représente une variation d'environ 60% sur la fenêtre de sélection étudiée (cf fig 5.10 b).

### 5.2.5.2 Énergie de paroi de domaines $\sigma_\omega$

Nous avons pu déduire de la relation 5.2 une valeur d'énergie surfacique de paroi de domaines qui varie entre 1,2 et  $1,55 mJ/m^2$  le long de la zone désaimantée. Une variation d'environ 20%

1. Un aimant parfait, sans interaction d'anisotropie ni dipolaire. Dans ce genre de système, un ordre magnétique à longue portée n'est pas envisageable

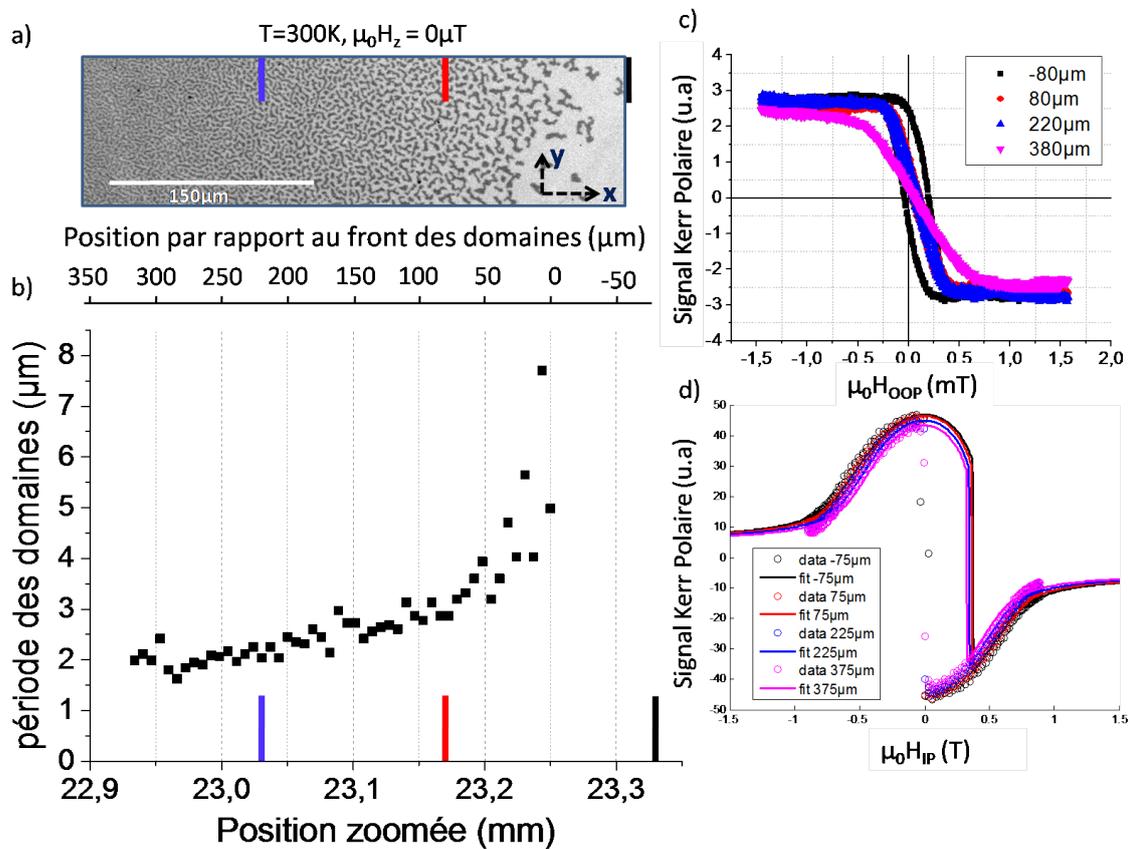


FIGURE 5.10: Caractérisation de la structure en domaines en labyrinthe par des techniques de Kerr polaire. a) Image en Kerr polaire, sans champ magnétique appliqué (image similaire à celle donnée en fig. 5.1, représentant la fenêtre utilisée comme base pour extraire les différents paramètres).

b) Extraction de la période des domaines ( $\mu m$ ) en fonction de la position (en  $mm$ ). La position par rapport au front des domaines (correspondant à la position de début de la zone spontanément désaimantée ( $0\mu m$ )) est précisée.

c) Exemple de cycles en Kerr polaire avec champ magnétique appliqué perpendiculairement à la surface du film pour les positions indiquées par les barres de couleur dans a) et b) (cycles similaires à ceux donnés en fig. 5.5). Positions correspondantes à celle par rapport au front des domaines.

d) Signal Kerr polaire en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan de la couche, utiles à l'extraction de  $\mu_0 H_a$ ; et fits  $SW$  associés. Positions correspondantes à celle par rapport au front des domaines.

La position  $380\mu m$  est hors de l'image (a).

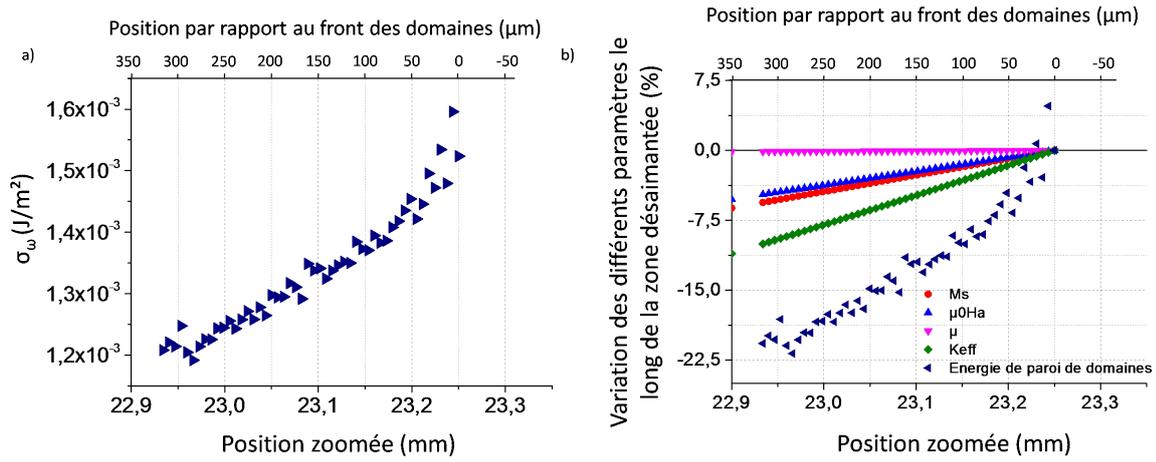


FIGURE 5.11: a) Dédudition de l'énergie de paroi des domaines  $\sigma_w$  en  $J/m^2$ .  
b) Variation des différents paramètres magnétiques (en utilisant leurs ajustements linéaires) par rapport au front de la zone désaimantée ( $0\mu m$ ) (en %).

est déduite sur la fenêtre de  $350\mu m$  étudiée (cf fig. 5.11 a et b). Cette faible valeur d'énergie vient justifier le phénomène de mobilité spontanée de ces domaines dont nous sommes témoins en imagerie Kerr à température ambiante. Cette mobilité est une conséquence directe de l'agitation thermique fortement perceptible dans cette zone désaimantée. De manière à sonder l'influence de l'agitation thermique sur notre système, nous avons utilisé le modèle de probabilité de type Néel-Brown pour exprimer le taux de nucléation des domaines de désaimantation. Comme mentionné au chapitre 2, en section 2.1.3.4, cette loi de probabilité s'exprime :  $P(t) = 1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right)$ , où  $\tau$  représente le temps moyen de nucléation et qui correspond à  $\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_N}{k_B T}\right)$ . Il est estimé ici égal à  $1s$ , ce qui correspond au temps d'acquisition typique d'une image sur le microscope Kerr.  $E_N$  est la barrière d'énergie à franchir pour amorcer la nucléation, elle est dépendante de l'anisotropie magnétique du système.  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $T$  la température.  $\tau_0$  est défini comme le taux d'essai et est une constante propre au système (généralement de l'ordre de  $10^{-10}s$ ). Avec ces valeurs de  $\tau$  et  $\tau_0$ , ce modèle prévoit une barrière d'énergie pour la frontière d'activation (nucléation) à température ambiante de  $23k_B T_{300K}$ .

De plus, cette faible valeur d'énergie de parois de domaines est un bon argument pour prouver la présence d'un terme lié à l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (*DMI*) dans notre tricouche. En effet, en utilisant les valeurs de  $M_s$  ( $0,94 - 0,88MA/m$ ) et  $K_{eff}$  ( $0,35 - 0,31MJ/m^3$ ) déduites précédemment dans cette zone, nous pouvons calculer une valeur d'énergie classique pour une paroi de type Bloch :  $\sigma_w^{Bloch} = 4 \cdot \sqrt{A_{ex} K_{eff}} \approx 3,5 - 10mJ/m^2$ , ce qui est au moins trois fois plus important que  $\sigma_w$  mesurée. La large gamme calculée pour  $\sigma_w^{Bloch}$  est due au fait que nous avons choisi de réaliser notre étude pour une gamme de constantes d'échange assez vaste.  $A_{ex}$  est choisi comme compris entre  $2,5$  et  $16pJ/m$ . Les valeurs intermédiaires (entre  $2,5$  et  $7,5pJ/m$ ) ont été déduites expérimentalement au *VSM - SQUID* grâce aux mesures de  $m(T)$ . Leur extraction est décrite en annexe B. Et  $16pJ/m$  est la valeur communément employée pour une couche fine de *Co* de  $0,6nm$  d'épaisseur [96].

La différence entre les valeurs d'énergie  $\sigma_w$  et  $\sigma_w^{Bloch}$  est expliquée par l'expression d'un terme *DMI* d'interface,  $D$  en  $mJ/m^2$ , dans notre système. Ce terme vient réduire l'énergie de paroi de

domaine suivant la relation [107] :

$$\sigma_\omega(J/m^2) = 4 \cdot \sqrt{A_{ex}K_{eff} - \pi|D|}, \quad (5.3)$$

nous conduisant aux faibles valeurs relevées pour  $\sigma_\omega$ . Le signe  $-$  vient définir la chiralité des parois des domaines, qui auront un sens de rotation anti-horaire, dans le cas d'une valeur de  $D$  positive [107]<sup>2</sup>.

Nous avons représenté la variation de  $\sigma_\omega$  et des différents paramètres magnétiques par rapport au front des domaines (position  $0\mu m$ ) en figure 5.11. On y déduit que  $\mu_0 H_a$  et  $M_s$  varient de 5 à 6% le long de la zone étudiée, ce qui induit une variation de  $K_{eff}$  d'une dizaine de %. Nous remarquons que le facteur  $\mu$  défini au chapitre 1 en section 1.5.2.1, rentrant dans l'expression de  $\sigma_\omega$  ne varie que très faiblement en position et n'a donc pas de rôle majeur dans la forte variation déduite pour cette énergie. La variation combinée de tous les autres paramètres en est plutôt la cause.

### 5.2.5.3 Dédution du facteur $D$ le long de la zone désaimantée

Grâce à la relation 5.3, nous avons déduit un terme  $DMI$ ,  $D$ , dans la gamme :  $0,8 - 2,5 mJ/m^2$  selon la valeur prise pour  $A_{ex}$ , ce qui correspond aux fortes valeurs de facteur  $D$  qui ont été reportées pour ce système très récemment par d'autres équipes [90, 108]. Belmeguenai et al. ont déduit un facteur  $DMI$  proche de  $2,71 mJ/m^2$  pour un  $Co$  de  $0,6 nm$  d'épaisseur pour le même système  $Pt/Co/Al_2O_3$ . Dans leur cas, ce facteur est déterminé directement par une technique de spectroscopie : Brillouin Light Scattering spectroscopy ( $BLS$ ), pour laquelle, seule la valeur du facteur de Landé  $g$  et l'aimantation  $M_s$  de l'échantillon sont à connaître. Ils s'affranchissent donc du choix de la valeur de  $A_{ex}$ . Cela pourrait donc signifier que la valeur de  $A_{ex}$  à utiliser pour notre système est proche de la valeur maximale de notre gamme ( $16 pJ/m$ ), car nous avons déduit  $D$  proche de  $2,5 mJ/m^2$  pour cette valeur d'échange. Néanmoins, nous garderons au cours de notre étude cette large gamme de constantes  $A_{ex}$  car le fait que notre zone désaimantée ait une  $T_c$  proche de la température ambiante peut aussi se traduire par une chute soudaine de la valeur de  $A_{ex}$  [109, 110].

Le facteur  $D$  étant directement lié au terme  $DMI$  de surface,  $D_s = t \cdot D$ , nous avons aussi pu déduire ce dernier en utilisant l'évolution de l'épaisseur de  $Co$  définie au chapitre précédent. En repérant la zone spontanément désaimantée à la position  $23,25 mm$ , nous avons pu déduire que l'épaisseur de cette zone est d'environ  $0,495 \pm 0,03 nm$  (cf table 4.1 du chapitre précédent). Nous avons défini cette épaisseur comme correspondant au front de la zone (position  $23,25 mm$ , ou  $0\mu m$  par rapport au front de la zone désaimantée), et avons utilisé la pente annoncée pour le gradient d'oxydation ( $0,01 nm/mm$ , cf chapitre 4), pour déduire l'évolution de l'épaisseur le long de cette zone. Notons que cela ne représente qu'une variation d'épaisseur très faible par rapport à l'épaisseur du film, de l'ordre du  $pm \ll 10^{-1} nm$ .

$D_s$  a été déduit compris dans la gamme :  $0,4 - 1,25 pJ/m$ , en utilisant différentes valeurs pour  $A_{ex}$  ainsi qu'une variation de cette constante le long du wedge, ce qui est à nouveau du même ordre que les valeurs déduites par Belmeguenai et al. [90] pour des épaisseurs légèrement plus élevées d'un système équivalent.

---

2. Notons que le gain en énergie de paroi grâce au facteur  $DMI$ , n'est pas dépendant du signe de  $D$  si l'aimantation dans la paroi est orientée pour minimiser l'énergie

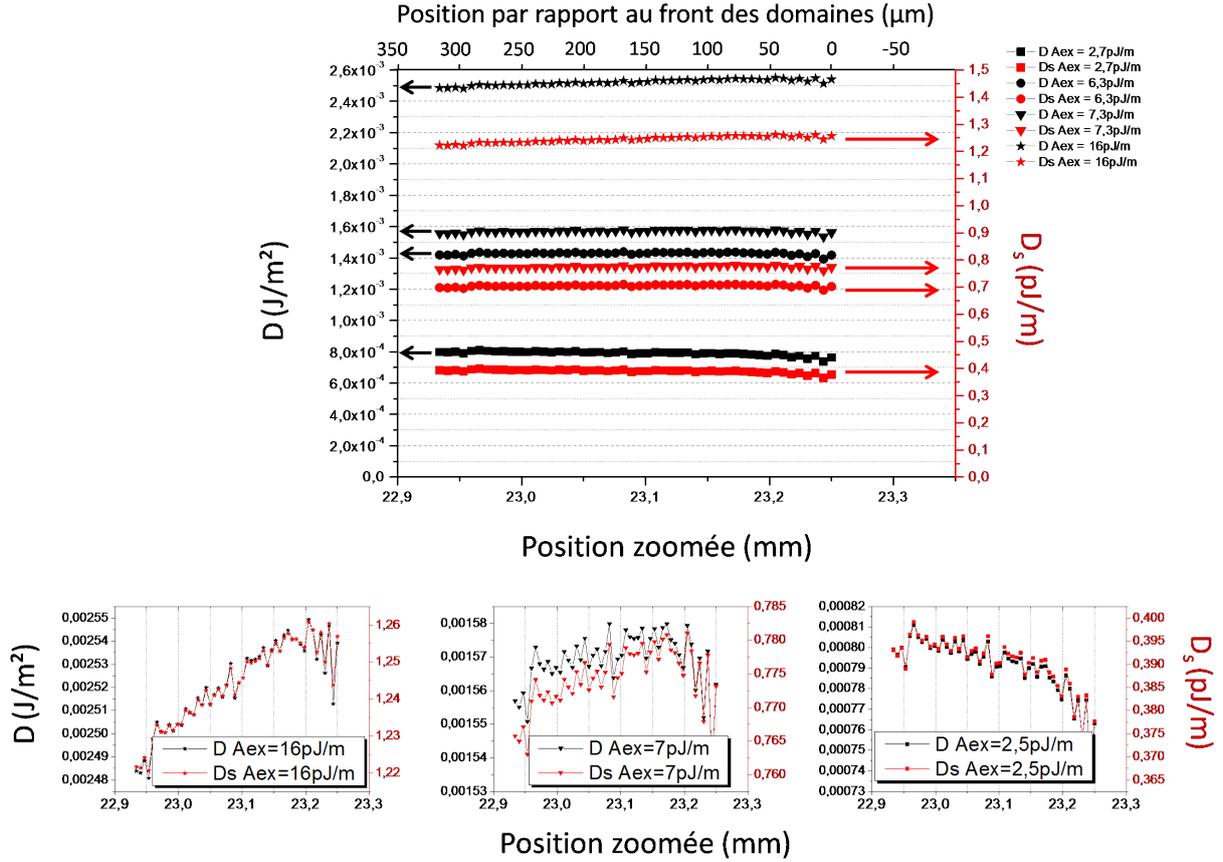


FIGURE 5.12: Déduction du facteur  $D$  en  $(J/m^2)$  et du facteur de surface  $D_s$  (en  $pJ/m$ ) en fonction de la position sur la zone étudiée ( $\mu m$ ) et pour différentes valeurs de  $A_{ex}$ . Pour ce tracé, nous avons gardé la valeur de  $A_{ex}$  constante en position.

#### 5.2.5.4 Influence de la variation de $A_{ex}$ sur l'évolution de $D_s$ le long de la zone ultra-fine

Nous remarquons que  $D$  et  $D_s$  évoluent le long de la zone spontanément désaimantée (cf fig.5.12) et dépendent fortement de la valeur utilisée pour la constante d'échange (cf fig.5.12). Il a été mis en évidence en 2016 que le terme  $DMI$  pouvait être piloté par le degré d'oxydation de l'interface du matériau ferromagnétique dans un système de type  $Fe/Ir$  [111]. Les auteurs, Belabbes et al., ont même insisté sur le fait qu'en fonction du pourcentage d'oxydation de la couche magnétique, le signe du facteur  $DMI$  pouvait aussi être amené à varier, changeant ainsi la chiralité attendue pour leur système.

Dans notre étude, nous avons traduit cette variation de degré d'oxydation de l'interface  $Co/Al_2O_3$  directement comme une variation de l'épaisseur totale de  $Co$ . Dans l'étude de Belmeguain et al. [90], en prenant en compte la gamme d'erreur, le terme de surface  $D_s$  semble globalement constant lorsque l'épaisseur du  $Co$  varie. Le  $DMI$  étant un effet d'interface dans le cas des tricouches, il n'est pas surprenant de ne pas remarquer de variation lorsque l'épaisseur de  $Co$  varie entre  $0,6$  et  $1,2nm$ . En effet, le paramètre de maille du cobalt hexagonal est égal à  $0,251nm$ .  $0,6nm$  représentent donc une épaisseur supérieure à 2 monocouches, les interfaces ne sont donc pas changées lorsque l'épaisseur de  $Co$  est augmentée de  $0,6$  à  $1,2nm$ . Un mélange des couches aux interfaces pourrait cependant s'exprimer de manière différente pour des épaisseurs comprises entre  $0,6$  et  $1,2nm$  et modifier alors les interfaces.

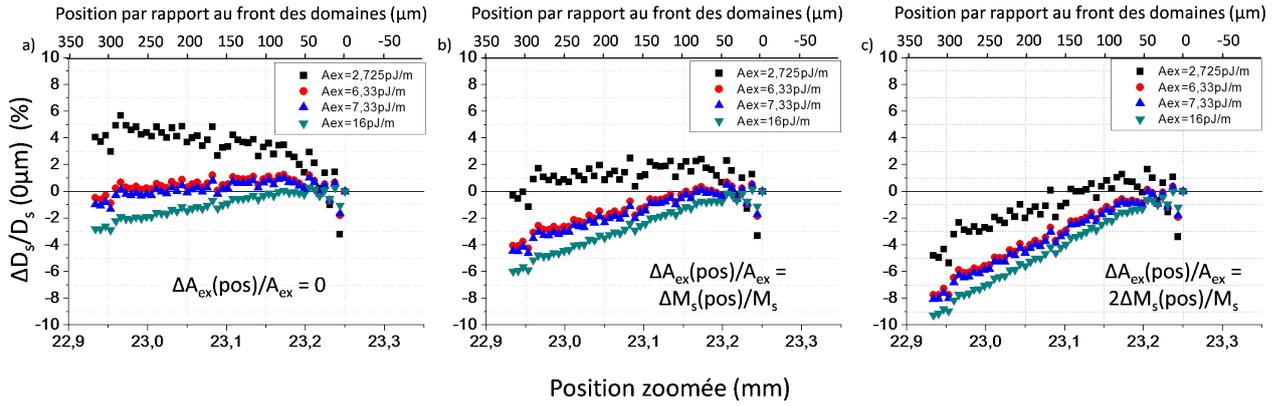


FIGURE 5.13: Variation du terme  $D_s$  par rapport au départ de la zone désaimantée ( $0\mu m$ ) en % pour différentes valeurs de  $A_{ex}$  :

- En gardant  $A_{ex}$  fixe,
- En prenant  $\Delta A_{ex}(pos)/A_{ex} = \Delta M_s(pos)/M_s$ ,
- En prenant  $\Delta A_{ex}(pos)/A_{ex} = 2\Delta M_s(pos)/M_s$ .

Dans le cas de notre système, dans cette zone précise désaimantée, nos épaisseurs sont tellement faibles ( $< 0, 5nm$ ), que nous nous trouvons justement dans le cas où les interfaces se modifient constamment. Le  $Co$  étant partiellement oxydé, sa chute d'épaisseur est équivalente à une progression de l'oxydation. De plus en plus d'atomes de  $Co$  sont oxydés. L'interface alors définie comme  $Co/CoO/Al_2O_3$  est donc en évolution constante, et du fait des prédictions de Belabbes [111], nous pouvons être amenés à voir le facteur  $D_s$  varier.

Nous avons mis en évidence que la variation de  $D_s$  observée est fonction de la valeur utilisée pour la constante d'échange, mais aussi de sa variation le long de la zone. En effet, du fait de la chute du signal d'aimantation, nous pourrions nous attendre à un effet sur le facteur  $A_{ex}$ . La tendance générale décrite dans le cas d'approximations en champ moyen est  $A_{ex} \propto M_s^2$  pour des températures proches de  $T_c$  [112].  $M_s$  variant d'environ 5% le long de la zone désaimantée,  $A_{ex}$  pourrait être amené à varier d'une dizaine de %. D'autres études théoriques ont porté sur la relation entre  $M_s$  et  $A_{ex}$  à basses températures. Ils ont conclu que la dispersion par rapport à cette loi quadratique pouvait s'écrire comme  $A_{ex} \propto M_s^{2-\epsilon}$ , avec  $\epsilon$  proche de 0.2 [113–115]. Considérer  $\Delta A_{ex}(pos)/A_{ex} = 2\Delta M_s(pos)/M_s$  est donc une bonne approximation et permettra de définir une gamme attendue pour la variation de  $D_s$  le long de la zone désaimantée. Nous étudierons aussi la variation de  $D_s$  pour une valeur intermédiaire de variation pour  $A_{ex}$  (en considérant  $A_{ex}$  directement proportionnel  $M_s$ ) donc pour :  $\Delta A_{ex}(pos)/A_{ex} = \Delta M_s(pos)/M_s$ .

Nous avons représenté en figure 5.13, la variation du facteur  $D_s$  le long de la zone étudiée, en fonction de la valeur de  $A_{ex}$  et de son évolution avec la propagation de l'oxydation. Une diminution de  $D_s$  entre 4 et 6% est attendue en faisant varier  $A_{ex}$  linéairement avec  $M_s$ , et jusqu'à 8 à 10% si l'on utilise la variation quadratique. Cette valeur ne varie que très peu si l'on considère la valeur la plus faible utilisée pour  $A_{ex}$  (2, 7pJ/m), et peut même amener à une augmentation du facteur  $D_s$  si l'on garde  $A_{ex}$  fixe en position (cf fig. 5.13 a).

Nous avons donc vu que  $D_s$  est en légère diminution dans la zone étudiée (en progressant vers les zones de plus forte oxydation). Il y a donc un contrôle du terme  $DMI$  avec le degré d'oxy-

dition de la couche magnétique d'un système de type tricouche  $Pt/Co/Al_2O_3$ . Rappelons que cela a été traduit ici par un effet dû à la variation de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. En simplifiant le raisonnement, un  $M_s$  volumique d'une couche de  $80nm$  de  $Co$  a été mesuré égal à  $1,35MA/m$  et la constante d'échange correspondante a été mesurée égale à  $21pJ/m$  par la technique de spectroscopie *BLS* [91]. Dans notre cas, où l'aimantation a été mesurée proche de  $0,94MA/m$  dans cette zone (cf chapitre précédent et sections précédentes). On s'attendrait à une valeur de  $A_{ex}$  aux alentours de  $14pJ/m$  pour une variation linéaire et de  $8pJ/m$  pour une variation quadratique avec  $M_s$ , donc une variation de  $D_s$  entre 6 et 8% en se reportant sur les graphes 5.13 b et c.

En conclusion, la chute des différents paramètres magnétiques le long de la zone désaimantée ( $\approx 400\mu m$ ) est globalement assez régulière et linéaire (cf fig. 5.5, zone  $\beta$ ), que ce soit pour le signal Kerr, le champ d'anisotropie ou encore la période des domaines. Malgré cela, la diminution de tous ces paramètres permet de mettre en évidence une variation assez forte de l'énergie utile à la création de parois de domaines, se manifestant visuellement par l'augmentation de la densité de ces domaines en labyrinthe lorsque l'on progresse vers les zones de plus forte oxydation.

Cela a permis de mettre en évidence l'expression d'un terme non-négligeable d'énergie due à la constante  $DMI$  du système, ainsi que de prédire sa valeur et d'étudier sa variation en fonction de la position sur la zone désaimantée. Rappelons que la variation abrupte de tous ces paramètres pour la zone juste voisine (cf zone  $\alpha$  dans fig. 5.5) est l'expression même d'une chute de la  $T_c$  de l'échantillon qui se retrouve très proche de la température de mesure. Ceci accroît la mobilité des domaines.

Nous allons maintenant nous concentrer sur les effets induits par l'application d'un champ électrique dans cette zone spontanément désaimantée de l'échantillon sur les nombreux paramètres magnétiques décrits. De forts effets en champ électrique peuvent être attendus pour une température de mesure proche de la  $T_c$  de l'échantillon.

## 5.3 Effets de champ électrique sur films ultra-minces

### 5.3.1 Montage pour l'application du champ électrique

Afin de pouvoir appliquer de forts champs électriques sur notre structure sur de grandes surfaces ( $800 \times 50 \mu\text{m}^2$  et  $300 \times 150 \mu\text{m}^2$ ), nous avons déposé une couche épaisse d'isolant au-dessus de la tricouche. Ce diélectrique a été déposé par la technique de dépôt par couche atomique (*ALD*) décrite au chapitre 3. D'abord,  $6 \text{nm}$  d'alumine supplémentaires ont été déposés, puis  $53 \text{nm}$  d'oxyde d'hafnium  $\text{HfO}_2$  (cf fig. 5.14). Les épaisseurs de ces différents oxydes ont été mesurées avec précision grâce à des mesures d'ellipsométrie (qui ne seront pas décrites ici), réalisées avec l'aide de Valérie Reita à l'Institut Néel.

Les constantes diélectriques relatives,  $\epsilon_r$ , de ces matériaux avaient été déduites d'études réalisées à l'Institut, avant le début de ma thèse. Des mesures de capacités électriques pour ces deux types d'oxydes, déposés au sein du même batti *ALD*, ont été opérées pour différentes épaisseurs.  $\epsilon_r \text{Al}_2\text{O}_3$  a été déduite proche de 10 pour la gamme d'épaisseur qui avait été étudiée ( $8 - 10 \text{nm}$ ). Cette constante est proche de celle annoncée pour l'alumine amorphe dans la littérature [116].

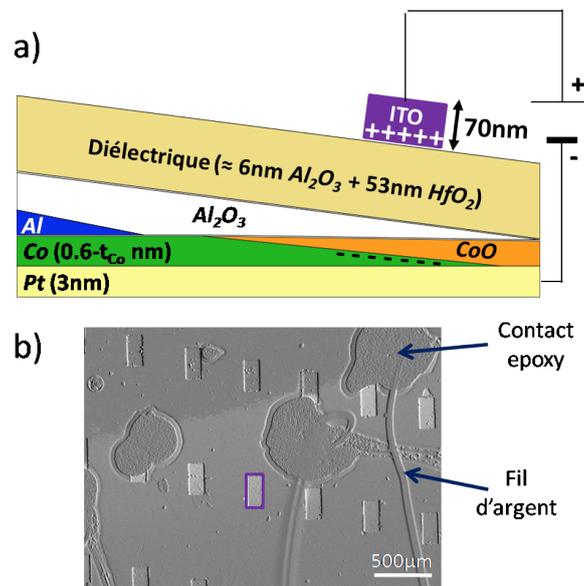


FIGURE 5.14: a) Représentation schématique de la tricouche, des isolants et des électrodes utilisés pour l'application de forts champs électriques.

b) Image en Kerr polaire du système et des connexions réalisées à l'epoxy + fil d'argent.

$\epsilon_r \text{HfO}_2$  a été mesurée comprise entre 12 et 15 pour des épaisseurs entre 6 et  $10 \text{nm}$ , ce qui est plus faible que les valeurs généralement reportées (entre 20 et 25) [116]. Cependant, cela correspond bien à ce qui a été annoncé par quelques études en considérant un  $\text{HfO}_2$  de structure monoclinique (16). Cette structure est généralement adoptée par l'oxyde d'hafnium dans le cas de couche assez minces ( $\approx 10 \text{nm}$ ) [117, 118]. Généralement, la permittivité diélectrique ne dépend que peu de l'épaisseur du matériau, mais elle est plutôt fonction de sa phase cristalline, donc indirectement de la méthode de dépôt de la couche diélectrique [119, 120]. Notre dépôt *ALD* est réalisé à "basse température" ( $100^\circ\text{C}$ , cf chapitre 3), pour éviter un éventuel recuit de notre tricouche. La structure cristalline de l'oxyde d'hafnium ainsi obtenue est peut être éloignée de ce qui est généralement mesuré.

La prise en compte des constantes diélectriques des différents oxydes<sup>3</sup> (alumine et oxyde d'hafnium) nous permet de définir le champ électrique effectif dans l'alumine, comme l'avait défini Bonell et al [121] dans le cas d'un mélange de polyimide et de  $MgO$  :  $E_{eff}(V/nm) = \frac{\epsilon_r HfO_2 \cdot V}{t_{HfO_2} \epsilon_r Al_2O_3 + t_{Al_2O_3} \epsilon_r HfO_2}$ , en prenant :  $t_{Al_2O_3} = t_{Al_2O_3 ALD} + t_{Al_2O_3 tricouche} = 6 + 2 \cdot 1,3 = 8,6nm$ . 1, 3nm correspondant à l'épaisseur d'aluminium au niveau de la zone désaimantée. Après oxydation, l'épaisseur d'alumine obtenue représente le double de cette épaisseur [4].

Nous pouvons aussi déduire de cela la quantité de charges accumulées par atome à l'interface  $Co/Al_2O_3$  comme  $\sigma = \epsilon_r Al_2O_3 \epsilon_0 E_{eff}(e^-/atome\ de\ surface)$  [121]. Cette valeur est généralement celle utile à la comparaison avec d'autres valeurs de la littérature pour les effets de charges.

Finalement, des électrodes individuelles d'*ITO* (Indium Tin Oxyde) de  $150 \times 300\mu m$  et de  $50 \times 800\mu m$  ont été déposées par pulvérisation sur le dessus de la structure. Les électrodes ont été définies grâce à un procédé de lithographie *UV*, puis de lift-off, décrits au chapitre 3. L'*ITO* a la particularité d'être transparent et permet donc une observation des effets directement par imagerie Kerr. Là encore, l'épaisseur déposée a été déduite des mesures d'ellipsométrie, représentant environ  $70nm$  (cf fig. 5.14 a et b).

Nous définissons ici le sens d'application du champ. Une tension positive appliquée induira une accumulation d'électrons à la surface de la couche de *Co* (cf fig. 5.14 a).

### 5.3.2 Effet direct sur les domaines en labyrinthe

Nous mentionnerons d'abord le fait que dans le cadre de ma thèse, de manière à étudier la reproductibilité des effets, l'étude sous champ électrique a été réalisée pour de nombreuses électrodes différentes, connectées à des positions différentes le long de la zone des domaines en labyrinthe. Nous montrerons donc d'abord schématiquement la position des différentes électrodes (cf fig. 5.15) dont les résultats seront présentés dans les paragraphes suivants et préciserons à chaque fois quelle électrode est concernée pour le résultat présenté.

Comme déjà mentionné au cours de ce chapitre, la proximité de la valeur de  $T_c$  de cette zone avec la température ambiante a pour effet d'amplifier les effets dus à l'application d'un champ électrique. Nous avons représenté en figure 5.16 un bilan des différents paramètres magnétiques, mesurés sur l'électrode *i*, qui ont été modifiés dans cette zone ultra-fine lors de l'application d'une gamme de tension comprise entre  $-20$  et  $20V$ . Notons que dans le cadre de ces mesures, la zone connectée se trouvait dans la zone très fluctuante avec perte de contraste Kerr à  $0V$  (cf électrode *i* en fig. 5.15), à environ  $600\mu m$  du front des domaines en labyrinthe (donc à la limite entre les zones  $\alpha$  et  $\beta$  décrites en figure 5.5). Nous retrouvons la zone spontanément désaimantée pour des tensions appliquées entre  $6$  et  $15V$ . Cette gamme de tension sera celle étudiée précisément dans le but d'extraire l'énergie de parois magnétiques  $\sigma_\omega$  pour cette électrode.

En première observation, nous remarquons que la variation de ces paramètres en fonction de la tension appliquée, est comparable à la variation de ces paramètres en fonction de la position sur l'échantillon comme représenté en figure 5.5, zone  $\beta$ . Il y a donc une similarité entre le fait d'appliquer un champ électrique à la surface de notre métal de transition *Co* et le fait d'oxyder progressivement celui-ci, cette analogie sera décrite par la suite. Nous décrirons plus précisément la variation des différents paramètres dans les paragraphes suivants, et reviendrons sur ce point.

3. Calcul simple tenant compte des capacités en série

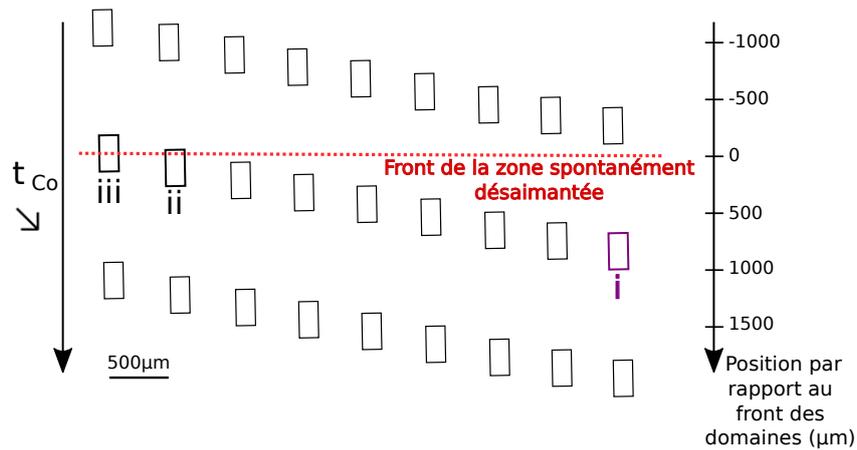


FIGURE 5.15: Représentation schématique de la position des différentes électrodes présentées dans cette section par rapport au front de la zone spontanément désaimantée. L'électrode *i* a été celle la plus étudiée et dont le bilan est présenté en figure 5.16. Elle est aussi celle mise en évidence par un rectangle carré sur la photo du montage (fig. 5.14 b, elle a été connectée après la prise d'image Kerr). Le sens de variation de l'épaisseur de *Co* est précisé.

### 5.3.2.1 Mise en évidence directe par imagerie Kerr

**Décalage des propriétés magnétiques :** L'effet de l'application d'un champ électrique sur cette zone de désaimantation a été remarquable aussitôt. En effet, nous avons pu observer par les techniques d'imagerie en Kerr polaire, un décalage de la zone des domaines en labyrinthes vers les zones de plus forte oxydation lors de l'application d'un champ électrique positif et inversement (cf fig. 5.17). Ce décalage en position avait déjà été observé au cours des études précédentes réalisées sur le même type de système à l'institut, et un décalage d'environ  $30\mu\text{m}/V$  avait été reporté pour une tension de  $1V$  appliquée sur  $44\text{nm}$  de ce même diélectrique (soit  $\approx 0,023V/nm(HfO_2 + Al_2O_3)$ ) [56]. Cependant, cette observation avait été faite dans une zone de plus faible oxydation.

Dans notre cas, nous avons déduit une équivalence de décalage du front de la zone des domaines en labyrinthe d'environ  $24\mu\text{m}/V$  pour  $1V$  appliqué sur les  $59\text{nm}$  de notre diélectrique (soit  $\approx 0,017V/nm(HfO_2 + Al_2O_3)$ ) (cf fig. 5.17). Donc, en se basant uniquement sur la quantification de ce décalage, nous pouvons déduire des effets de champ électrique légèrement plus soutenus dans cette zone de l'échantillon par rapport à la zone de plus faible oxydation étudiée précédemment. Ceci a été observé avec et sans champ magnétique appliqué (cf fig. 5.17 a et b). Cette observation a été réalisée sur une électrode proche du front de la zone de désaimantation : l'électrode *iii*, dont la position est représentée en figure 5.15.

Ce premier travail d'observation nous permet de confirmer qu'il y a un décalage important des propriétés magnétiques avec l'application du champ électrique sur la structure. De plus, l'effet observé dans cette zone est très symétrique et reproductible pour des valeurs raisonnables de tension appliquée (cf fig. 5.17 c). En effet, la position du front des domaines à  $0V$  est retrouvée après l'application de tensions entre  $0$  et  $10V$ . Au-delà, nous commençons à être témoins d'un effet de charges piégées influençant la structure à champ électrique nul, ce qui induit un décalage durable, irréversible, de la position du front à  $0V$ .

**Effet de champ électrique sur le mécanisme de renversement** Une autre mise en évidence directe des effets de champ électrique sur notre structure l'a été en étant attentifs au mécanisme

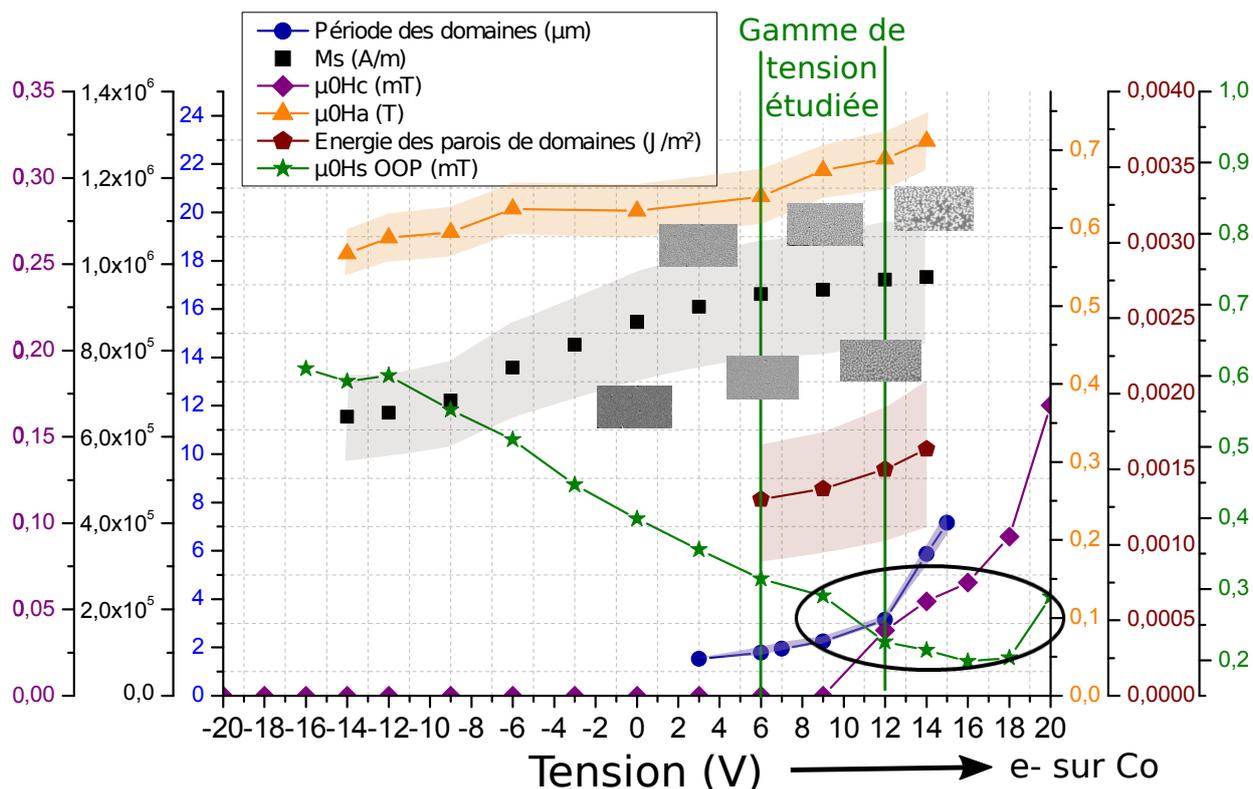


FIGURE 5.16: Évolution des paramètres magnétiques  $M_s$  (extrait de la combinaison des mesures  $VSM - SQUID$  et Kerr polaire);  $\mu_0 H_a$  (extrait des mesures en Kerr polaire avec champ planaire) et  $\mu_0 H_c$ ,  $\mu_0 H_{s\ OOP}$  (extrait des mesures en Kerr polaire avec champ perpendiculaire) et de la période des domaines (extrait de l'imagerie en Kerr polaire) en fonction de la tension appliquée (en  $V$ ) sur l'électrode supérieure d' $ITO$ . La gamme de tension étudiée plus finement (zone de désaimantation) est précisée, ainsi que la zone pour laquelle le champ de saturation est minimal (cercle noir). Ce bilan a été réalisé sur l'électrode  $i$ . Les erreurs dues aux mesures, indiquées par les bandes colorées, ont été calculées par la loi générale de propagation d'erreurs qui est détaillée en annexe J.

de renversement de l'aimantation. Comme cela l'avait été annoncé au chapitre 4, ce processus est différent selon la zone étudiée le long de la structure (cf fig. 4.2 b)). Nous avons réalisé des prises d'images lors de l'enregistrement des cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  et avons pu comparer les différents mécanismes. Nous avons représenté en figure 5.18 a) et b) les mécanismes dominants pour un champ électrique de  $\pm 9V$  sur l'électrode sondée. Celle-ci se situait très proche du front de la zone désaimantée (position quasiment semblable à celle de l'électrode présentée à la section précédente) : électrode  $ii$  en figure 5.15.

Nous remarquons que l'application d'un champ électrique positif favorise le mécanisme de propagation, après nucléation de domaines sur les bords de l'électrode. Ceci est comparable à la zone d'oxydation optimale avec une forte  $PMA$  décrite au chapitre précédent (zone  $B$ , image  $ii$ . en figure 4.2 b)). A l'inverse, un champ négatif vient favoriser le mécanisme de renversement dominé par la nucléation des volumes d'activation, et qui correspondrait à la zone  $C$  décrite au chapitre précédent. Ceci vient confirmer les observations précédentes réalisées à champ magnétique nul. Un décalage des propriétés magnétiques est bien obtenu sous l'application d'un champ électrique et est très semblable au décalage observé le long de l'échantillon au chapitre 4.

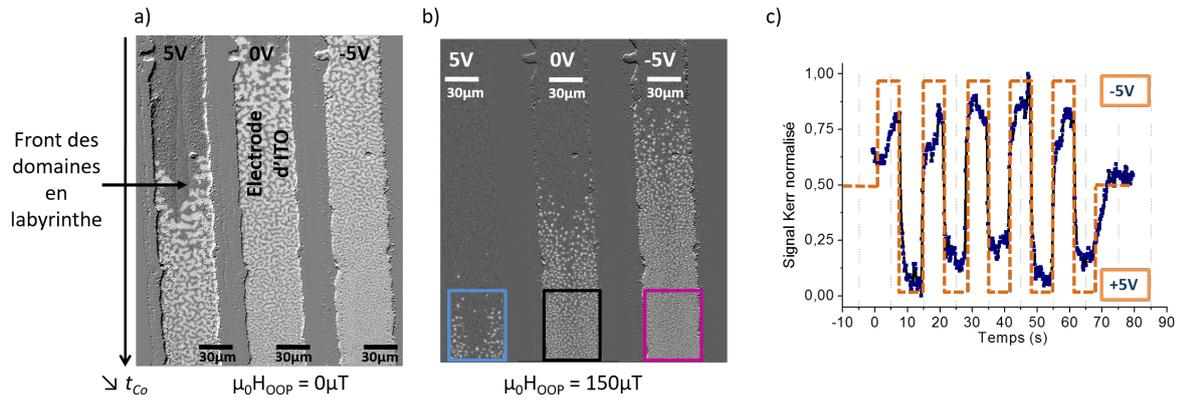


FIGURE 5.17: Mise en évidence directe des effets de champ électrique avec décalage de la zone de désaimantation spontanée lors de l’application d’une tension sur l’électrode d’ITO. Décalage observé sans champ magnétique appliqué (a), ainsi qu’avec un faible champ, ici  $150 \mu T$  (b). Le sens du gradient d’oxydation est précisé, et cette électrode est l’électrode *iii* dont la position est donnée en figure 5.15. Les cadres de couleurs représentés au bas de la figure b) sont les repères de l’étude qui sera présentée en section 5.3.3.1.

c) Signal Kerr polaire normalisé en fonction du temps, lors d’une mesure en champ électrique alterné ( $-5/ +5V$ ) répétée 5 fois toutes les 5s.

### 5.3.2.2 Cycles en Kerr polaire avec champ magnétique perpendiculaire : déduction de la variation du champ coercitif, de $H_s(OOP)$ et de l’aimantation

**Variations des paramètres :** La variation du champ coercitif avec l’application d’un champ électrique a été démontrée pour de nombreux systèmes au cours des dernières années (cf chapitre 2). Nous avons réalisé des mesures systématiques de  $\mu_0 H_c(V)$  pour chacun des échantillons connectés correspondant à plusieurs positions le long de la zone désaimantée (électrodes *i*, *ii*, *iii* représentées en figure 5.15 et bien d’autres qui ne sont pas présentées ici). Nous montrons en figure 5.19 les différents cycles Kerr enregistrés pour une position fixe et pour une gamme de tensions appliquée entre  $-21$  et  $21V$ . Ces tensions étaient appliquées symétriquement et par ordre croissant d’amplitude (soit  $0V$ , puis  $-2V$ , puis  $+2V$ , puis  $-4V \dots$ ). Nous faisons aussi apparaître en figure 5.19 l’électrode connectée, ainsi que la fenêtre de sélection, longue d’environ  $100 \mu m$ , où a été prise la mesure, cette électrode correspond à l’électrode connectée *ii* représentée en figure 5.15, qui se trouve au centre de la zone de désaimantation (présence des domaines à  $0V$ , cf fig. 5.19 a).

L’exploitation de ces cycles pour chacune des électrodes mesurées a été systématique et nous a permis de déduire une allure pour la variation de  $\mu_0 H_c$  pour toute la gamme de tensions concernées. Nous avons aussi extrait le champ de saturation perpendiculaire de la même manière que cela avait été fait en position dans la première partie de ce chapitre (cf fig. 5.5). Et nous avons extrait pour chacun des cycles le saut du signal Kerr, qui est proportionnel à  $M_s \cdot t$ . Cette mesure a été réalisée à une position fixe, la valeur de  $t_{Co}$  est donc commune. La variation du signal Kerr peut donc être estimée comme directement liée à la variation de  $M_s$ .

Les cycles équivalents et correspondants à l’électrode *i* en figure 5.15 décrite par la suite, et dont les variations sont résumées en figure 5.16, ont été reportés en annexe I. Pour cette électrode *i*, nous observons une chute de la valeur du champ coercitif. Lorsque le champ électrique positif appliqué diminue : le champ coercitif atteint 0 quand la tension appliquée est d’environ  $9V$  (cf

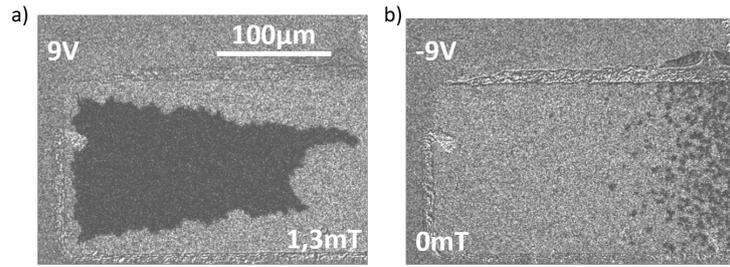


FIGURE 5.18: Renversement de l'aimantation sondée par imagerie en Kerr polaire lors de l'enregistrement de cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$ , sur une électrode  $ii$  proche du front de la zone de désaimantation :

- a) pour  $+9V$ , le renversement se fait par propagation,
- b) pour  $-9V$ , le renversement se fait par nucléation.

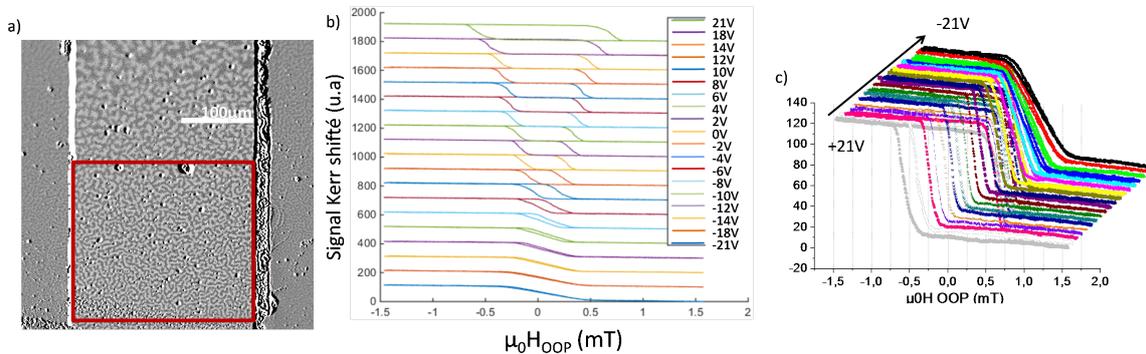


FIGURE 5.19: a) Électrode et position sur laquelle la mesure a été réalisée ( $100 \times 150 \mu m$ ). b) Cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  non normalisés, en Kerr polaire, pour un gradient total de tension de  $42V$ . Pour chacun des cycles, le signal Kerr est décalé en ordonnée afin de faciliter la lecture. c) Mêmes cycles représentés en cascade.

fig. 5.16). Le champ de saturation perpendiculaire ( $\mu_0 H_s$  OOP) possède une valeur minimale dans cette zone (pour des tensions allant de 20 vers 9V), puis réaugmente nettement lorsque le champ électrique appliqué continue de diminuer (cf fig. 5.16). Enfin, la chute du signal Kerr ( $\propto M_s$ ) est plutôt linéaire dans la gamme de tension étudiée pour cette électrode  $i$  (zone désaimantée entre 6 et 12V), et chute plus fortement pour des valeurs négatives de tension appliquée.

**Similarités avec le processus d'oxydation :** Le traitement des cycles en Kerr polaire a permis de mettre en évidence les similarités observées entre la variation des paramètres avec l'application d'un champ électrique, pour une position fixe, et avec un décalage en position sur l'échantillon. Cette équivalence a déjà été observée lors des études précédentes [56]. L'existence d'une gamme de tension/position pour laquelle le champ de saturation perpendiculaire est minimal ( $200 - 250 \mu T$ ) se remarque dans les deux cas (cf zone mise en évidence en fig 5.5 et 5.16). La décroissance progressive de la coercivité est aussi commune aux deux cas, ainsi que la chute linéaire du signal d'aimantation ( $\equiv$  signal Kerr polaire).

Une équivalence peut être déduite : l'application d'une variation de tensions de  $30V$  est équivalente à un déplacement de  $500 \mu m$  le long de cette zone de désaimantation, ce qui peut per-

mettre de balayer la zone complète (d'environ  $400\mu m$  de long pour rappel). Une analogie peut être décrite dans le but de comprendre ces fortes similitudes entre le fait d'accumuler les charges à l'interface ou le fait d'oxyder progressivement le cobalt.

Le processus d'oxydation du cobalt, lorsque l'oxydation totale de l'aluminium a été atteinte, peut être décrit par l'équation d'oxydo-réduction :  $2Co(s) + O_2 = 2O^{2-} + 2Co^{2+}$ . Cela conduit à la formation des liaisons  $Co-O$ . Les potentiels standard des différents couples oxydant/réducteur sont représentés en figure 5.20. Il existe une analogie avec l'application d'une tension sur la structure et un procédé d'oxydoréduction. En effet, l'application d'un champ électrique positif entre l'électrode d'ITO et le film de  $Co$  vient accumuler des charges négatives à la surface du film de cobalt. Nous pourrions donc imaginer que cela viendrait forcer la réaction d'oxydo-réduction en enclenchant la demi-réaction  $2Co^{2+} + 4e^- = 2Co(s)$ , déstabilisant ainsi les liaisons  $Co-O$ . Ce serait équivalent à une épaisseur effective de cobalt,  $t_{eff\ Co}$ , renforcée. Ce qui induirait un renforcement des propriétés magnétiques, comme l'aimantation, la  $T_c$  ou encore la coercivité.

A l'inverse, la charge partielle positive portée par un atome de  $Co$  au sein d'une liaison  $Co-O$  est plus importante que celle portée par l'atome de  $Co$  dans une liaison  $Co-Al$ . Une accumulation de charges positives à l'interface du film de  $Co$ <sup>4</sup> augmenterait donc la charge partielle de ces atomes de surface et aurait donc un effet similaire à la création d'une liaison  $Co-O$ , donc à une oxydation renforcée, et donc à une épaisseur effective de  $Co$  plus faible. Ceci induirait un affaiblissement des propriétés magnétiques

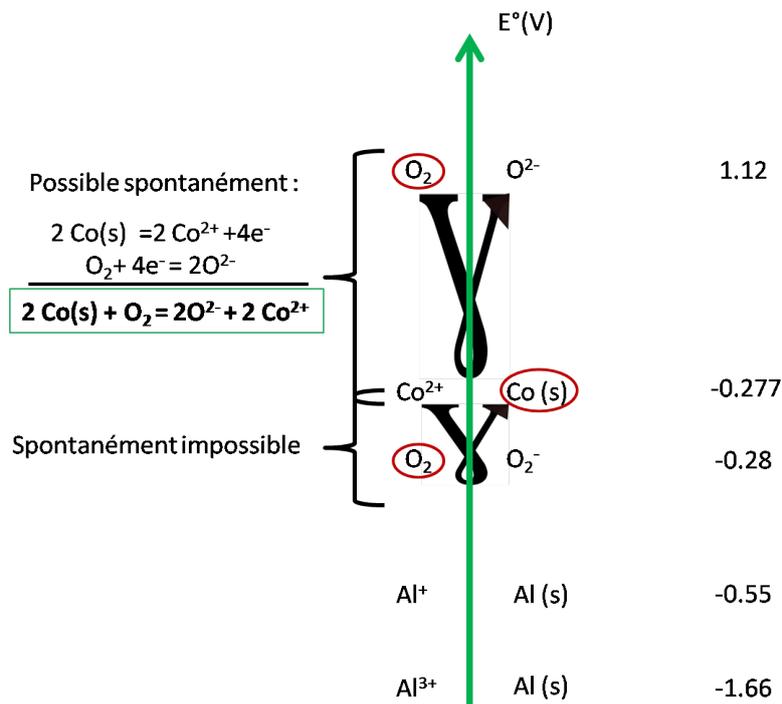


FIGURE 5.20: Potentiels standard des différents couples entrant dans le processus d'oxydation de notre interface. Mise en évidence de la réaction d'oxydation du  $Co$ , lorsque l'aluminium est entièrement oxydé (sinon l'oxydation d' $Al$  est favorisée).

Pour rappel, ceci n'est qu'une analogie pouvant aider à la compréhension des fortes similarités obtenues en position et en champ électrique sur notre échantillon.

4. Donc l'application d'une tension négative entre l'électrode d'ITO et le film de  $Co$ , cf convention de sens d'application en section 5.3.1

### 5.3.2.3 Variation de l'anisotropie effective

Les mesures de cycles  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$  réalisées en Kerr polaire et décrites au chapitre précédent ainsi qu'au chapitre 3 ont été utilisées pour déduire les variations du champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a$  sous l'application d'un champ électrique pour l'électrode  $i$  (cf fig. 5.15). Les cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  décrits dans le paragraphe précédent nous donnant accès à la variation de  $M_s$ , nous pourrions donc déduire de ces mesures une variation pour l'anisotropie effective  $K_{eff}$ . Les mesures réalisées sur l'électrode  $i$  qui a servi à établir le bilan en figure 5.16 sont présentées en figure 5.21. Les cycles  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$  y sont représentés ainsi que les ajustements déduits du modèle de renversement de type domaine unique ( $SW$ ). Nous avons aussi fait apparaître les images en Kerr polaire correspondantes et nous remarquons bien la présence des domaines en labyrinthe pour des tensions appliquées entre 6 et 14V. Les cycles  $M_z(H_{OOP})$  pour ces tensions là sont aussi représentés ici. Rappelons que le scan complet en champ électrique (avec champ magnétique perpendiculaire appliqué) pour cette électrode  $i$  est présenté en annexe I.

$\mu_0 H_a$  varie linéairement de 10% (entre 0, 64 et 0, 69T) pour une gamme de tension entre 6 et 12V (gamme correspondant à notre étude poussée pour cette électrode  $i$  cf paragraphes suivants).

La variation de  $M_s$  est, elle aussi, très linéaire pour cette gamme de tension (6 – 12V) (cf fig. 5.16) comme mentionné précédemment en section 5.3.2.2. Cette diminution est faible et a été estimée à  $\approx 3,5\%$ . Elle est tout de même à considérer car cette chute du signal de  $M_s$  est plus forte que ce qui pourrait être attendu. En effet, nous pouvons calculer qu'une tension de 6V appliquée sur notre diélectrique induit une charge en surface de 0, 012  $e^-$ /atome de surface. Cela se traduit par un moment magnétique induit de 0, 012  $\mu_B$ . Cela correspond à une variation attendue pour  $M_s$  de  $\approx 0,9\%$  en considérant deux plans atomiques de  $Co$  présentant un moment de 1, 6  $\mu_B$  par atome. Notre variation de moment magnétique est donc plus forte que ce qui est attendu en considérant un effet d'accumulation de charges pur.

Cependant, une chute plus importante du signal a été remarquée pour des valeurs de tensions inférieures à 6V et négatives. Pour ces valeurs-ci, nous n'étions plus en mesure d'observer les domaines en labyrinthe (cf fig. 5.16).

La valeur de  $M_s$  a été estimée à 0, 97MA/m pour une tension de 14V, qui correspond au front de la zone spontanément désaimantée. Cette valeur avait été déduite des mesures en  $VSM - SQUID$  décrites au chapitre précédent. Puis une correspondance des valeurs a été réalisée en combinant cette valeur extraite de la technique  $VSM - SQUID$  avec les mesures du saut du signal Kerr, qui permettent de mesurer la valeur de  $M_s$  très localement (ici un point tous les 20  $\mu m$  a été pris).

Grâce à ces mesures de  $\mu_0 H_a(V)$ , que l'on peut réécrire  $2K_{eff}(V)/M_s(V)$ , ou encore  $2(K_s(V)/t - 1/2 \mu_0 M_s(V)^2)/M_s(V)$ , et connaissant la variation  $M_s(V)$ , nous avons été en mesure de déduire une forte variation de l'énergie d'anisotropie magnétique. Toujours pour cette zone d'étude (6 – 12V), une variation assez linéaire égale à  $\beta_{PMA} = \Delta K_s / \Delta E = 273 fJ/(V.m)$  a été déduite. Cet ordre de variation est important par rapport à ce qui est généralement déduit pour des effets d'accumulation de charges (10 – 100  $fJ/(V.m)$ ) [39, 41, 122]. Ceci est dû à la faible  $T_c$  de notre système, mais aussi à une forte valeur de constante diélectrique  $\epsilon_r$ , qui favorise l'effet d'accumulation de charges [40]. Récemment des valeurs similaires ont été reportées dans les travaux de Nozaki et al. [69] pour un système de  $Cr/Fe(t < 0, 6nm)/MgO$ . Cet effet s'intensifie (est doublé) pour des tensions négatives appliquées sur notre électrode  $i$ , lorsque le contraste Kerr est fortement diminué. Nous sommes alors très proches de la transition entre l'état ferromagnétique désaimanté de notre structure et un état très fluctuant paramagnétique.

Ces fortes valeurs de variations déduites pour  $M_s$  ainsi que pour  $K_s$  suggèrent un processus

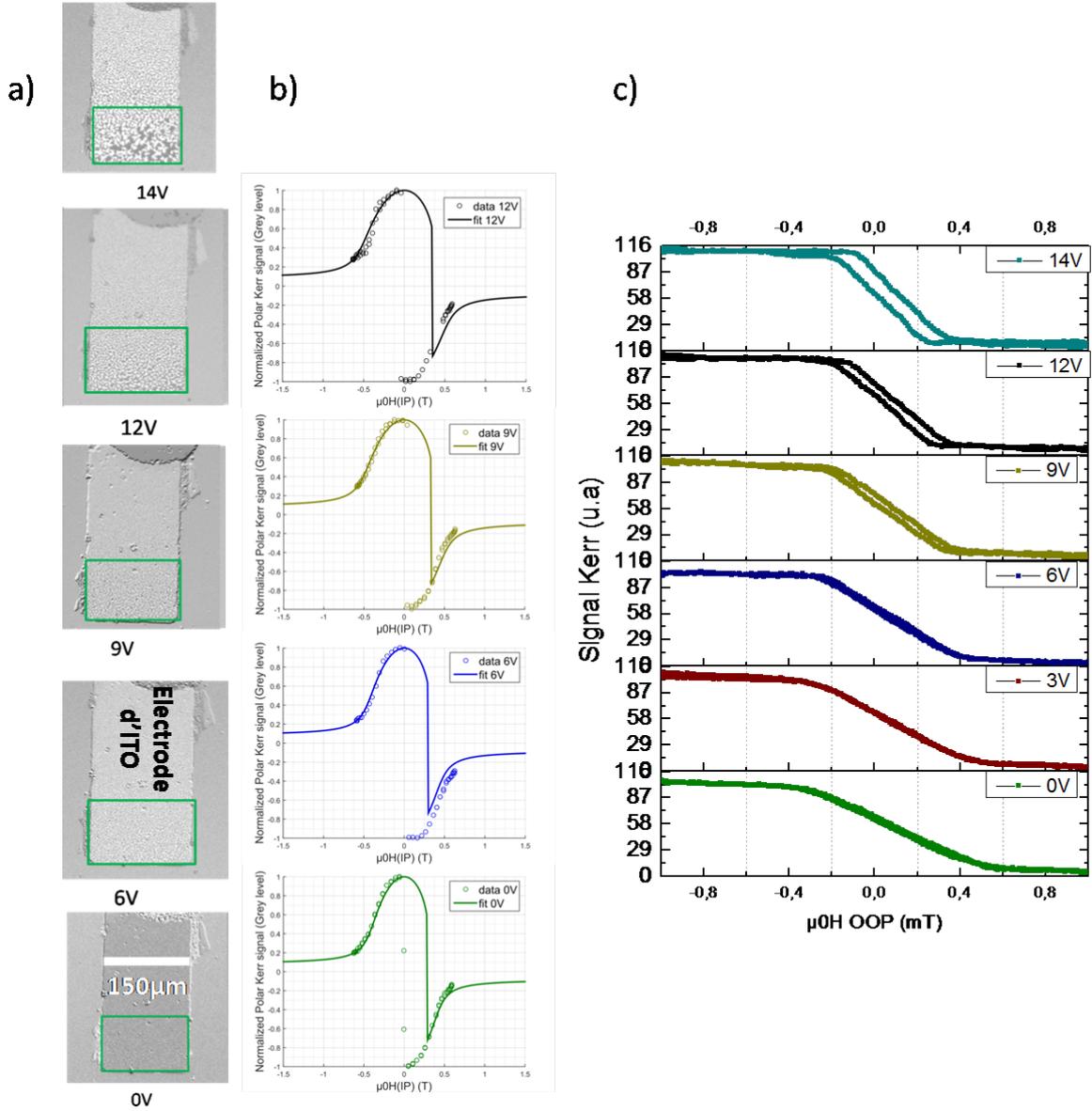


FIGURE 5.21: a) Images en Kerr polaire de la zone de désaimantation présentant des domaines en labyrinthe pour différentes tensions appliquées ( $V$ ) sur l'électrode  $i$ , dont la position est donnée en figure 5.15. La fenêtre de sélection où ont été réalisées les mesures est précisée en vert. Ces images sont enregistrées à champ magnétique nul.

b) Cycles  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$  réalisés en Kerr polaire, et fits par le modèle de renversement de type Stoner-Wohlfarth ( $SW$ ) associés. Le travail d'ajustement a été réalisé pour la partie à champ négatif, pour laquelle la dérive du champ magnétique appliqué était moins importante. Le cycle enregistré à 14V n'était pas exploitable du fait d'une trop forte dispersion dans le champ magnétique lors de la mesure.

c) Rappel des cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  réalisés en Kerr polaire pour ces mêmes tensions.

de mouvement atomique lors de l'application du champ électrique : phénomène de migrations ioniques (cf chapitre 2). Cependant les échelles de temps utilisées sont faibles comparées à celles du travail de Bauer et al. [67] qui avait mis en évidence des migrations d'ions oxygène et ne sont donc pas de l'ordre estimé pour atteindre un processus de migration d'oxygène au sein du diélectrique. De plus la très bonne réversibilité de notre effet en champ électrique peut être un argument contre la possibilité de mouvement d'ions. Ces effets forts sont donc principalement le résultat d'une très faible valeur de la température du Curie de cette zone ultra-fine.

#### 5.3.2.4 Variation de $\sigma_\omega$

La période des domaines  $2L$  chute de 43% entre la structure à 12V et celle obtenue à 6V (équivalent à une chute de  $0,68\mu m$  pour la taille des domaines  $L$ ). Pour comprendre comment le champ électrique influence la période de ces domaines et l'énergie de leur parois  $\sigma_\omega$ , nous avons déduit  $\sigma_\omega(V)$  grâce aux différentes valeurs mesurées pour  $L(V)$ ,  $M_s(V)$  et  $\mu_0 H_a(V)$ , et en utilisant la relation (5.2). La chute de cette énergie est aussi représentée en figure 5.16 et a été estimée à 13% entre 12 et 6V. Si l'on se réfère aux résultats de la section précédente, cette variation serait équivalente à un décalage de  $130 - 170\mu m$  le long de la zone ultrafine (cf fig. 5.11). De plus, nous déduisons  $\sigma_\omega = 1,3 - 1,5 mJ/m^2$  pour la gamme de tensions étudiée, ce qui est cohérent avec la gamme de valeurs déduites en position pour cette zone de désaimantation (cf paragraphe 5.2.5.2).

Notons tout de même que cette manière de déterminer l'énergie des parois des domaines est très indirecte et engendre une forte erreur due en partie aux mesures intermédiaires de  $L$  et de  $M_s$ , mais aussi à l'incertitude sur la valeur initiale de  $t$ . L'erreur de  $\sigma_\omega$  est aussi représentée en figure 5.16 et le détail du calcul d'erreurs est développé en annexe J. Cependant, malgré cette forte barre d'erreur, la variation de  $\sigma_\omega$  est clairement observée car la structure en domaines évolue.

Ces différentes valeurs d'énergie déduites en fonction de la tension appliquée au sein du système vont nous permettre de faire un premier travail de supposition quant à la variation du facteur  $DMI$  d'interface sous champ électrique. Ces déductions seront données grâce à la relation (5.3) annoncée à la section précédente.

#### 5.3.2.5 Variation de $I - DMI$ et de $A_{ex}$

Nous avons vu à l'instant que la variation de l'énergie des parois des domaines n'est pas négligeable avec l'application d'un champ électrique. La structure en domaines s'en trouve modifiée. Les mesures directes nous permettent de connaître les évolutions de  $K_{eff}(V)$ . Sa variation est attendue comme égale à  $\Delta K_{eff}/K_{eff}(V) = \Delta\mu_0 H_a/\mu_0 H_a(V) + \Delta M_s/M_s(V) \approx 10 + 3,5 = 13,5\%$  entre 12 et 6V. Or, selon la relation (5.3),  $\sigma_\omega$  est fonction de l'anisotropie effective, mais aussi de la constante d'échange  $A_{ex}$  et de la constante  $D$ . Si nous nous basions sur une variation de l'énergie induite uniquement par celle de  $K_{eff}$  en champ électrique, l'évolution attendue pour  $\sigma_\omega$  serait de l'ordre de  $13,5/2 = 6,75\%$ , ce qui est deux fois plus faible que ce que nous déduisons expérimentalement ( $\approx 13\%$ ).

**Contexte actuel :** Il a aussi été démontré très récemment, théoriquement et expérimentalement, que le champ électrique pouvait avoir un impact sur la constante d'échange [109, 123, 124] et/ou sur le facteur  $DMI$  [125, 126].

Pour l'une de ces études [109], un rôle dominant a d'ailleurs été attribué à la variation de la constante d'échange dans le changement de la structure des domaines en labyrinthe .

Jusqu'à ce jour, seulement peu d'études ont reporté une variation du facteur  $DMI$  en champ électrique. La première mise en évidence expérimentale a montré l'existence de ce contrôle dans le cas de couches épaisses de  $Fe$  ( $20nm$ ), préparées par épitaxie. Pour ces couches épaisses, Nawaoka et al. [125] étaient capables de déduire une variation de l'anisotropie de surface  $26fJ/(V.m)$ , ainsi qu'une variation de leur facteur  $DMI$  de surface de  $7, 3fJ/(V.m)$  (ou  $40nJ/m^2$  pour  $1V$  appliqué sur leur structure). Cependant, il est spécifié que leur technique de mesure possède une résolution minimale de  $0, 5mJ/m^2$ . La variation de  $D$  ainsi déduite est bien inférieure à cette résolution [125].

Dans le cas des couches ultra-minces, un contrôle du facteur  $DMI$  a été envisagé pour des échantillons de  $Pt/Co/MgO$ , avec 3 monocouches de  $Co$ , et a été calculé théoriquement égal à  $\frac{\partial D(J/m^2)}{\partial E(V/m)} = 15, 02fJ/(V.m)$  en négligeant l'agitation thermique [126]. Cependant, aucune mise en évidence expérimentale n'a encore été reportée. Nous dévoilerons donc ici comment nous avons utilisé la variations de nos différents paramètres magnétiques en champ électrique, dans le but de distinguer les effets éventuels, dûs à la modulation du facteur  $DMI$  ou bien de la constante d'échange.

**Choix de la variation de  $A_{ex}(V)$  :** Comme cela l'a été suggéré dans certaines études [109, 124],  $A_{ex}$  a été choisi comme influencé par l'application du champ électrique pour cette étude. Cependant, nous avons choisi de fixer sa variation avec la tension à :  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 2\Delta M_s/M_s(V) \approx 7\%$  pour la zone d'étude entre 6 et  $12V$ . Comme indiqué en section 5.2.5, au quatrième paragraphe, choisir  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 2\Delta M_s/M_s(V)$  est une bonne approximation pour notre température d'étude. Cela nous permettra de définir des valeurs seuil pour la variation envisagée du facteur  $D$  avec le champ électrique. Les valeurs seuil correspondant aux deux extrêmes :  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 2\Delta M_s/M_s(V)$  et  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 0$ . Nous pourrions ainsi définir une plage de valeurs possibles pour la variation du facteur  $D$  en fonction de la tension appliquée.

**Déduction de la variation du facteur  $D(V)$  :** Le facteur  $D$  a donc été déduit de la même manière qu'à la section 5.2.5.3 pour chacune des tensions de la zone d'étude et pour la même plage de valeurs pour  $A_{ex}$  ( $2, 5 - 16pJ/m$ ). Nous avons représenté en figure 5.22 l'énergie totale des parois de domaines  $\sigma_\omega$ , qui augmente avec le champ électrique croissant et positif (cf fig. 5.16 et 5.22). Nous y avons aussi représenté ses différentes composantes :  $\sigma_\omega^{Bloch} = 4 \cdot \sqrt{A_{ex}K_{eff}}$ , l'expression décrivant classiquement l'énergie d'une paroi de type Bloch ; et :  $\sigma_\omega^{DMI} = -\pi D = \sigma_\omega - 4 \cdot \sqrt{A_{ex}K_{eff}}$ , le terme d'énergie supplémentaire lié au facteur  $DMI$ .

Nous remarquons tout d'abord que l'énergie due au terme  $DMI$  est très affectée par la valeur choisie pour  $A_{ex}$ , et qu'elle peut être variée d'un facteur 4 pour notre gamme de valeurs utilisées pour  $A_{ex}$ . Selon la valeur choisie comme base pour  $A_{ex}$ , une chute du facteur  $D$  de l'ordre de  $7, 7 - 5, 5\%$  ( $3, 7 - 0.1\%$  en gardant  $A_{ex}$  fixe) a été extraite entre 12 et  $6V$ , donc pour un gradient de champ électrique  $\Delta E$  proche de  $0, 130V/nm$ . La variation la plus forte pour  $D(V)$  a été obtenue pour la plus forte valeur de constante d'échange (cf fig. 5.22 b).

Pour la gamme étudiée ( $2, 5 < A_{ex} < 16pJ/m$ ), nous avons déduit un coefficient de variation :  $\beta_{DMI} = 312-1430fJ/(V.m)$  ( $13-707fJ/(V.m)$  en gardant  $A_{ex}$  fixe en champ électrique). Comme cela avait été prédit théoriquement [126], ce coefficient de variation est au minimum du même ordre que celui qui a été déduit pour la variation de l'énergie d'anisotropie magnétique ( $\beta_{PMA} = 273fJ/(V.m)$ ). Ce coefficient peut même être jusqu'à 5 fois plus élevé que  $\beta_{PMA}$  selon

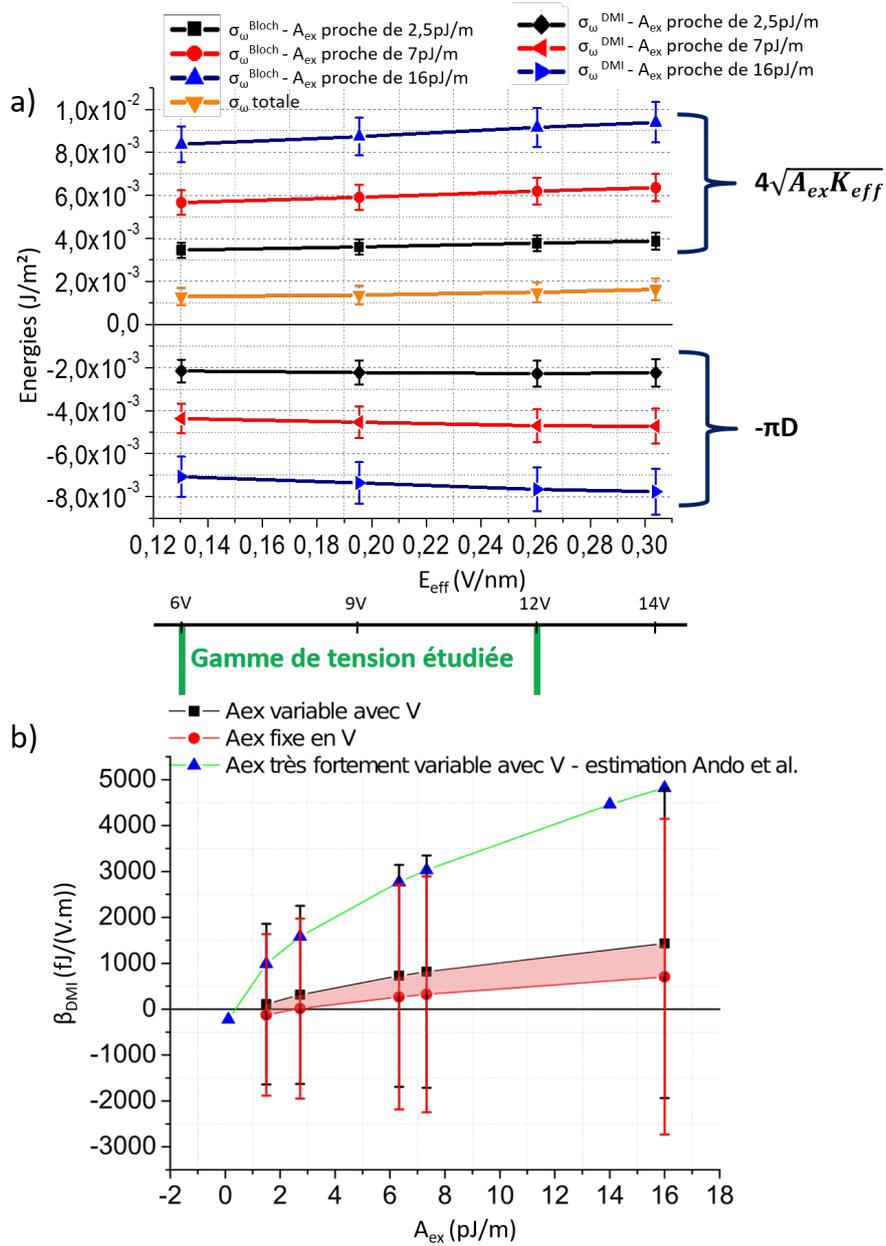


FIGURE 5.22: a) Variations des différents termes d'énergie avec le champ électrique effectif (V/nm). Les résultats sont présentés pour une gamme de 2.5 – 16 pJ/m pour la constante d'échange et en considérant  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 2\Delta M_s/M_s(V)$ . **La valeur de  $\sigma_{\omega}$  totale est déduite directement (expérimentalement) des valeurs de périodes des domaines  $L$ .**

b) Variations attendues pour  $D$  (fJ/(V.m)) en fonction de la constante d'échange (pJ/m), et selon la dépendance de  $A_{ex}$  en champ électrique. *Les erreurs sont obtenues en réalisant l'ajustement linéaire de  $D(E_{eff})$  (donc en calculant la pente  $\frac{\partial D(J/m^2)}{\partial E(V/m)}$ ) pour la gamme d'étude entre 6 et 12V, en considérant les erreurs de mesure sur  $D$ .*

la force du paramètre d'échange. Pour une valeur typique de champ électrique de  $1V/nm$ , cette variation représente une gamme de  $0,31 - 1,4mJ/m^2$  pour une couche de *Co* ultra-fine ( $t$  étant proche de deux monocouches). Ces valeurs de différents  $\beta_{DMI}$  pour les différentes valeurs prises pour  $A_{ex}$  ont été récapitulées dans le tableau 5.1 :

	$A_{ex}$ fixe en $V$			$A_{ex}$ variable en $V$		
$A_{ex}$ centre électrode	$2,5pJ/m$	$7,5pJ/m$	$16pJ/m$	$2,5pJ/m$	$7,5pJ/m$	$16pJ/m$
$\beta_{DMI} \frac{fJ}{V.m}$	13	324	707	312	816	1430

TABLE 5.1: Résumé des valeurs obtenues pour la variation du facteur *DMI* de volume en fonction du champ électrique appliqué correspondant à :  $\frac{\partial D(J/m^2)}{\partial E(V/m)}$ .

**Définition des valeurs seuil :** Nous avons représenté en figure 5.22 b le coefficient de variation  $\beta_{DMI}$  en fonction de la valeur de base utilisée pour  $A_{ex}$ . Un profil de type quadratique se remarque. La zone colorée met en évidence la gamme de variation que l'on peut envisager pour  $D(V)$ , en fonction de la loi puissance reliant  $A_{ex}$  à  $M_s$ , donc en fonction de la variation de  $A_{ex}$  avec la tension appliquée. Cette zone est délimitée par les deux paliers définis précédemment (le palier supérieur correspondant à  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 2\Delta M_s/M_s(V)$  et l'inférieur correspondant à  $\Delta A_{ex}/A_{ex}(V) = 0\%$ ).

La troisième courbe (verte) définit  $\beta_{DMI}$  en considérant la variation pour  $A_{ex}(V)$  qui avait été définie par Ando et al. [109] (50% pour un champ électrique de  $0,2V/nm$ ). Nous avons considéré cette variation  $A_{ex}(V)$  linéaire pour des valeurs plus faible de champ électrique, pour pouvoir réaliser le tracé. Ando et al. [109] n'ont considéré aucun facteur *DMI* et ont donc déduit un effet dominant de  $A_{ex}$  dans la modification de leur structure en domaines.

Dans notre cas, nous n'avons pas remarqué d'effet dominant par rapport à la modification en champ électrique de notre structure en domaines. En effet, nous déduisons une variation non négligeable de chacun des paramètres magnétiques, sans pour autant que la variation de l'un ou de l'autre ne prenne le dessus. Pour rappel, nous avons déduit une variation du signal d'aimantation de  $3,5\%$  ; une variation d'environ  $10\%$  de l'anisotropie effective ; ainsi qu'une évolution du facteur *DMI* estimée à  $5,5 - 7\%$ . Ceci en imposant une variation de  $A_{ex}$  de  $2 \times 3,5 = 7\%$ .

La forte évolution que nous avons déduite pour la largeur de nos domaines  $L$  est donc le résultat d'une combinaison des variations de chacun des paramètres magnétiques. Les coefficients  $\beta$  potentiellement très grands extraits pour les variations des énergies d'anisotropie magnétique et liée au *DMI* sont principalement dus au fait que les effets de champ électrique sont fortement accentués pour une température de mesure proche de la  $T_c$  du système.

Précisons aussi que l'erreur due à la mesure est importante du fait de l'extraction indirecte du paramètre  $D$ , ce qui explique les barres d'erreur importantes représentées en figure 5.22. Le calcul est détaillé en annexe J et les précisions concernant les erreurs systématiques à la mesure, communes à chaque point, sont données.

Nous allons maintenant voir comment la modification en tension de ces différents paramètres magnétiques permet de contrôler la création des bulles skyrmioniques mises en évidence en section 5.1.2.1.

### 5.3.3 Effet sur les bulles skyrmioniques : Contrôle de leur nucléation

Comme annoncé au chapitre 2, la création de bulles skyrmioniques a récemment été l'objet de nombreuses études et a été mise en évidence pour plusieurs systèmes, à la fois théoriquement [84, 127] et expérimentalement [128]. Des techniques telles que le couplage par transfert de spin [84, 127], l'effet Joule [129], ou encore la contrainte [130] ont été réalisées avec succès assurant le processus de nucléation de ces objets magnétiques. Cependant, ces techniques s'avèrent être énergivores ou bien difficiles à intégrer au sein d'un dispositif.

L'utilisation d'un champ électrique dans le cadre de la manipulation des bulles skyrmioniques présente donc de nombreux avantages tels que sa faible consommation d'énergie, une intégration qui pourrait être facilitée au sein des dispositifs, ainsi que le fait de conserver ces bulles stables sous l'application du champ électrique<sup>5</sup>. Très récemment, la première mise en évidence expérimentale de nucléation de skyrmions, purement à l'aide d'un champ électrique, a été reportée [128] en même temps que nous soumettions notre article. Celle-ci a été réalisée à basse température (4K) sur des couches épitaxiées de structure *Fe/Ir* par des techniques de microscopie à effet tunnel avec des courants polarisés en spin. Ce travail faisait suite à celui de Romming et al. [74] mentionné au chapitre 2, et qui utilisaient le champ électrique comme assistance au renversement de leurs skyrmions par champ magnétique appliqué.

Dans cette section, nous développerons comment nous avons mis à profit les variations sous champ électrique de nos paramètres magnétiques afin de contrôler la nucléation et l'annihilation de nos bulles skyrmioniques obtenues sous faible champ magnétique appliqué. La particularité de notre technique est qu'elle s'opère aussi à température ambiante.

**Modèle de bulle isolée :** Le modèle utilisé dans notre cas est un modèle décrivant l'énergie d'une bulle isolée. Ce modèle a été introduit par Kooy et Enz [30] puis a été développé par Cape et Lehman en 1971 [131]. Il vient compléter le travail d'introduction énonçant les termes d'énergie des domaines en champ magnétique nul, présenté au chapitre 1 en section 1.5.2 et rappelé dans ce chapitre en section 5.1.2. Leur travail, très complet, a permis de décrire énergétiquement un réseau de domaines parallèles, un réseau de bulles ("domaines cylindriques"), ainsi qu'une bulle isolée, tout en les mettant en évidence expérimentalement dans un film de grenat, présentant très peu de défauts structurels.

Dans le cas de couches présentant des défauts et une forte anisotropie uniaxiale, l'une des conclusions apportées par leur travail est que la nucléation des domaines se produit essentiellement sur ces défauts. Pour un système étudié à l'équilibre, il devrait donc y avoir le même nombre d'objets magnétiques<sup>6</sup> créés qu'il y a de défauts. Ceci vient à nouveau confirmer que la nucléation thermiquement activée joue un rôle non-négligeable au sein de notre système, car nous avons observé une densité d'objets qui augmentait lorsque l'on se déplaçait vers les zones de plus forte oxydation (cf fig. 5.3) ou lorsque l'on appliquait un champ électrique négatif pour une position fixe, donc pour un nombre de défauts structurels considéré comme fixe (cf fig. 5.17 b). Notre configuration magnétique est donc très dépendante du rapport entre l'énergie du système et l'énergie thermique. Nos conditions d'expérimentation permettaient d'être sensibles à des événements dont l'échelle de temps est comprise entre 100ms et quelques secondes. Ceci nous permet de définir une barrière d'énergie thermique  $E = 23k_B T_{293K}$ , correspondant à la valeur pour la-

---

5. contrairement au mouvement qui pourrait être induit dans le cas de leur manipulation à l'aide d'un courant

6. Bulles et domaines

quelle le mécanisme de nucléation est estimé à un taux supérieur à  $1Hz^7$ . Cette valeur a été déduite en utilisant un modèle de Néel-Brown définissant la probabilité de nucléation.

L'énergie utile à la nucléation d'une bulle skyrmionique d'environ  $2\mu m$  de diamètre est trop importante si l'on considère un mécanisme de renversement uniforme. Nous déduisons donc que la création de nos bulles micrométriques est initiée par la nucléation d'un skyrmion de taille nanométrique, dont le rayon va évoluer vers sa taille d'équilibre (de l'ordre du  $\mu m$ ). Toujours en considérant des parois de domaines fines par rapport à la taille des domaines/bulles obtenus (cf chapitre 1, section 1.5.2), l'énergie de la bulle skyrmionique par rapport à l'état uniformément saturé sous champ magnétique non nul peut s'exprimer comme la somme de l'énergie de parois de domaines, de celle due au champ magnétique appliquée (Zeeman) [131], ainsi que du gain d'énergie magnétostatique (démagnétisante) :

$$\Delta E_{skb}(R, t, M_s, \sigma_\omega) = \sigma_\omega t 2\pi R + 2\mu_0 M_s H t \pi R^2 - \mu_0 M_s^2 \pi t^3 I(d), \quad (5.4)$$

avec, pour rappel,  $t$  l'épaisseur du film de  $Co$ ,  $\sigma_\omega$  l'énergie surfacique par unité de surface des parois de domaines (cf section 5.1.2 de ce chapitre et 1.5.2 au chapitre 1), et  $M_s$  l'aimantation à saturation. Nous avons aussi  $R$ , le rayon de la bulle skyrmionique,  $\mu_0 H$  le faible champ appliqué perpendiculairement (de l'ordre de  $150\mu T$  dans notre cas).  $I(d)$  est l'expression du gain en champ démagnétisant apporté par la création de la bulle, et est fonction de  $d = 2R/t$ . Il est défini comme suit [132] :

$$I(d) = -\frac{2}{3\pi} \left[ d^2 + (1 - d^2) \frac{E(u^2)}{u} - \frac{K(u^2)}{u} \right], \quad (5.5)$$

avec  $u^2 = d^2/(1 + d^2)$  et  $E(u)$  et  $K(u)$  les intégrales elliptiques de second et de premier ordre (respectivement) définies par :

$$E(u) = \int_0^{\pi/2} \sqrt{1 - u \sin^2(\alpha)} d\alpha, \quad (5.6)$$

$$K(u) = \int_0^{\pi/2} \frac{d\alpha}{\sqrt{1 - u \sin^2(\alpha)}}. \quad (5.7)$$

Cette différence d'énergie  $\Delta E_{skb}$ , ainsi que les différents termes cités en (5.4), en fonction du diamètre de la bulle sont représentés en figure 5.23. Nous remarquons qu'il existe un minimum local dans ce profil d'énergie, et qu'il correspond au diamètre d'équilibre des bulles skyrmioniques observé expérimentalement. Une fois créé grâce aux fluctuations thermiques, le skyrmion nanométrique, dont le diamètre est réduit à la largeur de parois  $\delta_\omega$ , va donc se répandre jusqu'à atteindre ce diamètre d'équilibre. Pour cela, il lui faudra franchir la barrière d'énergie dite de nucléation  $\Delta E_{nuc}$ , qui correspond au maximum local de ce profil (cf fig. 5.23). La barrière d'énergie d'annihilation est définie comme la différence d'énergie entre maximum et minimum locaux du profil. Elle représente la barrière à franchir pour faire disparaître la bulle skyrmionique par sa compression.

Dans le cas où :  $\Delta E_{nuc} < 23k_B T_{293} < \Delta E_{ann}$ , nous nous trouvons dans le cas de bulles stables pour lesquelles la nucléation est permise grâce aux fluctuations thermiques et l'annihilation n'est pas favorable.

Cette différence d'énergie  $\Delta E_{skb}$  a été utilisée pour reproduire le phénomène de variation sous champ électrique de la densité des bulles skyrmioniques pour l'électrode *iii* décrite en figure

---

7. cf section 5.2.5.2

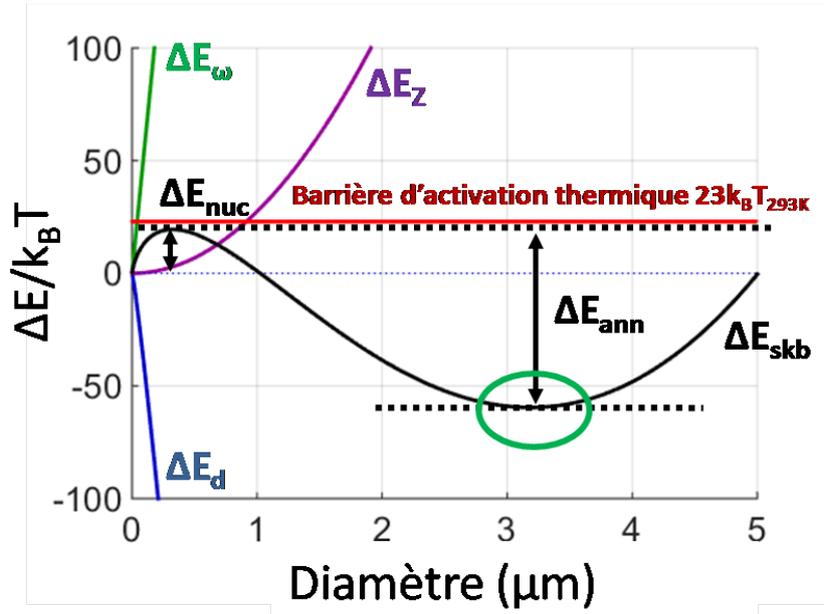


FIGURE 5.23: Détermination analytique de la différence entre l'énergie d'un état saturé et celle d'une bulle isolée  $\Delta E_{skb}$ , en fonction du diamètre de la bulle  $D = 2R$  (m);  $t = 0,493nm$ ;  $\mu_0 H = 150\mu T$ ;  $M_s = 0,955MA/m$ ;  $\sigma_\omega = 1,46mJ/m^2$  et  $K_{eff} = 0,324MJ/m^3$ . Pour rappel, ces paramètres ont été mesurés expérimentalement.

Les différents termes composant  $\Delta E_{skb}$  sont indiqués :  $\Delta E_\omega$  pour l'énergie de parois de domaines,  $\Delta E_d$  pour l'énergie démagnétisante et  $\Delta E_Z$  pour l'énergie Zeeman.

Les barrières d'énergie  $\Delta E_{nuc}$  et  $\Delta E_{ann}$  sont indiquées, ainsi que le diamètre d'équilibre (cercle vert).

La barrière d'énergie thermique est représentée en rouge  $\Delta E/k_B T_{293} = 23$ .

5.17 b. Les différents profils d'énergie sont représentés en figure 5.24 pour différents paramètres. Cette électrode se trouvait proche du front de la zone désaimantée (cf position de l'électrode *iii* en figure 5.15). Nous avons utilisé les valeurs expérimentales des paramètres  $M_s$ ,  $\sigma_\omega$  et  $K_{eff}$  déduits dans la zone désaimantée et résumés en figure 5.16. L'épaisseur de cobalt a été estimée proche de  $0,493nm$  pour cette zone.

Les profils en énergie sont ensuite calculés pour différentes tensions appliquées en utilisant les dépendances des paramètres magnétiques déterminées expérimentalement. Dans le cas des profils en énergie représentés pour 0 et pour  $-5V$  en figure 5.24, nous nous trouvons dans le cas où les bulles sont stables et la nucléation est permise. Nous remarquons aussi que le diamètre d'équilibre varie quelque peu avec ce modèle. Cependant, nous n'avons pas pu mettre cela en évidence expérimentalement car la densité des bulles devenant trop importante, cela a un impact sur le diamètre de chacune.

Dans le cas à  $+5V$ , ( $\Delta E_{nuc} > 23K_B T_{293} > \Delta E_{ann}$ ), la nucléation de ces bulles n'est pas permise et l'annihilation de celles qui sont présentes se fait très vite : dans ce cas là, les quelques bulles encore présentes sont dues aux inhomogénéités de la couche, qui peuvent amener à avoir une énergie de nucléation plus faible en certains points. La variation locale des paramètres piège alors les bulles.

L'application du champ électrique a donc un rôle à la fois sur la barrière d'énergie de nu-

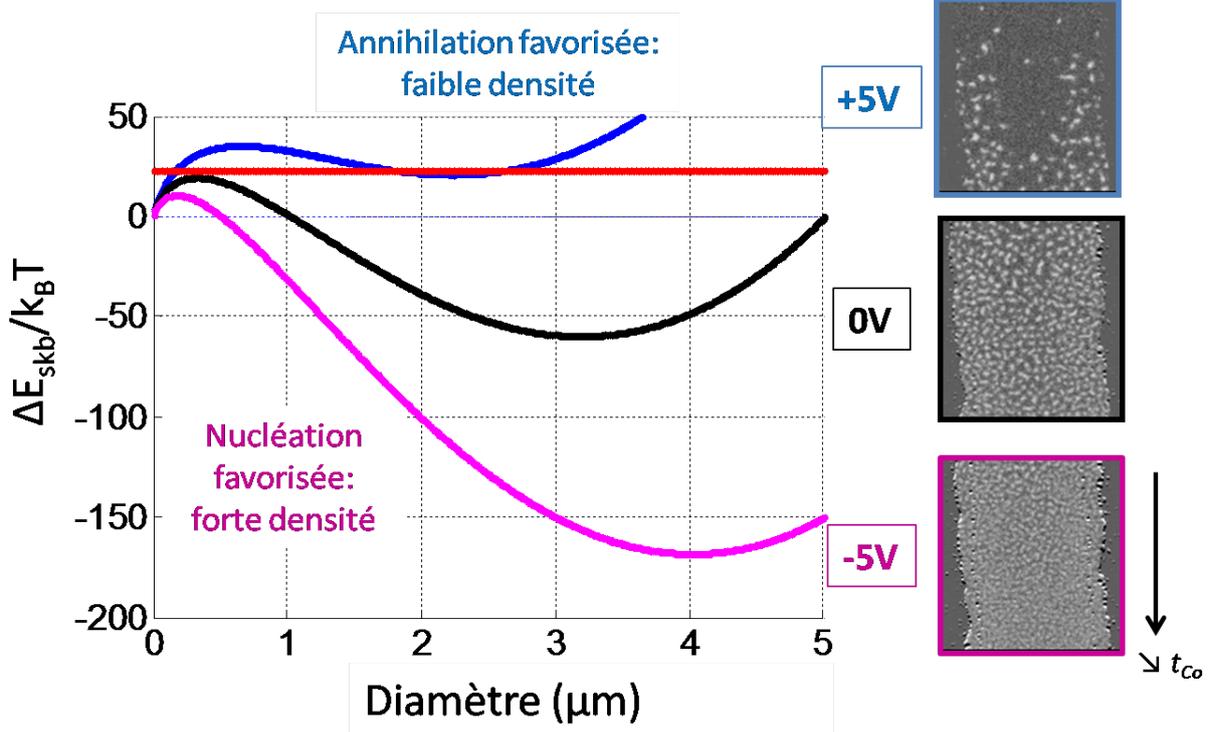


FIGURE 5.24: Détermination analytique de la différence entre l'énergie d'un état saturé et celle d'une bulle isolée  $\Delta E_{skb}$ , en fonction du diamètre de la bulle  $D = 2R$  (m);  $t = 0,493nm$ ;  $\mu_0 H = 150\mu T$ ;  $M_s(0 \pm 5V) = 0,955 \pm 0,024MA/m$ ;  $\sigma_\omega(0 \pm 5V) = 1,46 \pm 0,16mJ/m^2$  et  $K_{eff}(0 \pm 5V) = 0,324 \pm 0,025MJ/m^3$ . Pour rappel, ces paramètres ont été mesurés expérimentalement.

Le sens de variation d'épaisseur du  $Co$  est précisé (cf chapitre 4 pour sa détermination).

La barrière d'énergie thermique est représentée en rouge  $\Delta E/k_B T_{293} = 23$ .

cléation et la barrière d'énergie d'annihilation des bulles skyrmioniques, ceci en influençant les paramètres magnétiques tels que l'aimantation ou l'anisotropie effective. Le contrôle des valeurs de ces barrières d'énergie est permis surtout par le contrôle important de la valeur de l'énergie des parois de domaines  $\sigma_\omega$ . La variation de ces valeurs en tension a été mesurée expérimentalement (cf section première partie du chapitre 5), les valeurs prises pour tracer l'allure de  $\Delta E_{skb}$  sont donc bien cohérentes avec les valeurs expérimentales et leur variations sous tension. La variation de  $\sigma_\omega$  est déduite sans champ magnétique appliqué, grâce à la période des domaines de la zone en question.

**Principe du switch :** Le contrôle de la densité des bulles skyrmioniques en champ électrique permet de proposer un dispositif qui pourrait servir "d'interrupteur" à bulles (switch). En effet, pour des valeurs de champ électrique plus importantes, nous avons été en mesure de mettre en évidence la complète annihilation des bulles dans un cas (+20V), et une nucléation très forte dans le cas inverse (-20V), donnant également lieu à un retournement quasiment complet de l'aimantation. Cet effet de switch de skyrmions est représenté en figure 5.25 a et b et s'est montré très reproductible pour les échelles de temps utilisées ( $\delta t = 2s$ ). De plus, nous avons vu précédemment qu'une variation de tension appliquée de 30V représentait un décalage des propriétés d'environ  $500\mu m$ , dans le cas du switch, le gradient appliqué est de 40V, ce qui est suffisant pour balayer entièrement la zone spontanément désaimantée.

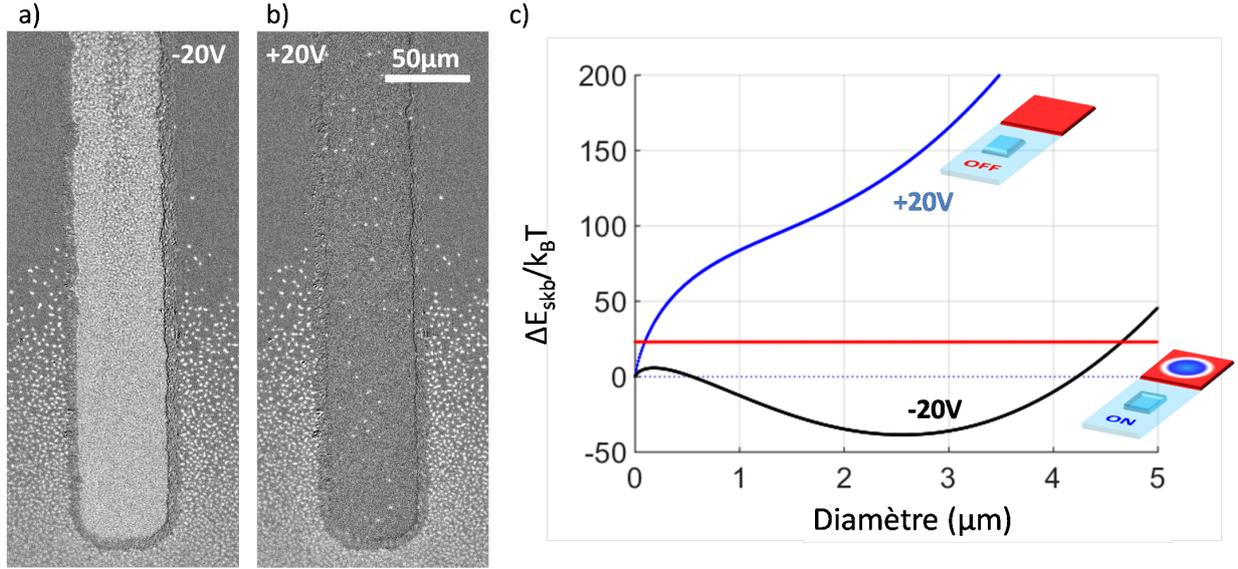


FIGURE 5.25: Images en Kerr polaire représentant le retournement par champ électrique des bulles skyrmioniques, avec un champ magnétique perpendiculaire appliqué de  $150\mu T$ . Ces images ont été enregistrées 2s après l’application de la tension de (a)  $-20V$  et (b)  $+20V$   
c) Profil d’énergie pour la bulle isolée illustrant l’effet de switch ;  $t = 0,493nm$  ;  $\mu_0 H = 150\mu T$  ;  $M_s(+20V) = 1,03MA/m$  ;  $M_s(-20V) = 0,68MA/m$  ;  $\sigma_\omega(+20V) = 1,92mJ/m^2$  ;  $\sigma_\omega(-20V) = 0,70mJ/m^2$  et  $K_{\text{eff}}(+20V) = 0,396MJ/m^3$  et  $K_{\text{eff}}(-20V) = 0,203MJ/m^3$ . A nouveau, les paramètres utilisés pour  $M_s$ ,  $t$  et  $K_{\text{eff}}$  sont ceux déduits expérimentalement.

Nous avons déduit expérimentalement une variation du signal d’aimantation de 33% ainsi qu’une variation de l’anisotropie effective d’environ 49%, en enregistrant les cycles  $Kerr \propto M_z(H_{OOP})$  et  $Kerr \propto M_z(H_{IP})$  à 20 et à  $-20V$ , comme décrit en première partie de ce chapitre. Ceci nous a permis de définir la variation d’énergie d’anisotropie magnétique égale à  $\beta_{PMA-2} \approx 323fJ/(V.m)$ , ce qui rejoint la forte variation,  $\beta_{PMA}$ , que nous avons déduite en section 5.3.2.3.

L’utilisation du modèle de bulle isolée, connaissant les variations des paramètres magnétiques avec la tension, nous a donc permis d’avoir accès à la variation nécessaire de  $\sigma_\omega$  pour obtenir un effet switch à fort champ électrique (cf fig. 5.25 c). Pour cela, nous avons étudié les gammes d’énergies qui permettent d’avoir un très fort taux de nucléation/ très fort taux d’annihilation des bulles (cf fig. 5.26 a et b). La valeur  $\sigma_\omega(-20V)$  permettant d’obtenir une barrière d’annihilation assez forte et une valeur de diamètre correspondant à nos observations expérimentales est proche de  $0,70mJ/m^2$  (cf fig 5.26 b). Et la valeur  $\sigma_\omega(+20V)$  permettant la compression des bulles skyrmioniques en réduisant très fortement la barrière d’annihilation, tout en conservant une barrière de nucléation forte, se trouve être au minimum égale à  $1,80mJ/m^2$  (cf fig. 5.25 a)<sup>8</sup>. Nous avons vu en figure 5.11 que l’énergie surfacique de parois était comprise entre  $\approx 1,2 - 1,6mJ/m^2$  dans la zone spontanément désaimantée. Les valeurs d’énergie déduites pour illustrer l’effet de switch sont donc cohérentes avec cette gamme.

**Perspectives à plus fortes épaisseurs :** Pour rappel, les très fortes variations de  $M_s$  et de  $K_{\text{eff}}$ , donc de  $\sigma_\omega$  (63% dans le cas du switch à  $\pm 20V$ ) en champ électrique sont dues à la proximité

8. Les valeurs de  $M_s$  et de  $K_{\text{eff}}$ , mesurées expérimentalement, sont précisées en légende de la figure 5.25

de la  $T_c$  avec la température ambiante de mesure. Cependant, nous pouvons noter que les variations de l'aimantation et de l'énergie de parois ont des effets opposés : une hausse de  $M_s$  aide à faire chuter  $\Delta E_{nuc}$ , alors que l'inverse se produit pour une augmentation de  $\sigma_w$ . L'efficacité du processus de switch des bulles skyrmioniques peut s'avérer être meilleure pour une zone de l'échantillon où nous aurions un  $M_s$  fixe.

Pour illustrer ceci, nous avons calculé de la même manière le profil d'énergie de la bulle pour une épaisseur de film de  $0,6nm$  et une valeur d'aimantation égale à  $1,1MA/m$  (cf valeur déduite au chapitre 4 dans la zone I). Pour cette épaisseur plus importante, la variation de l'aimantation peut être considérée comme négligeable devant celle de l'anisotropie sous champ électrique [56].

En utilisant les valeurs de  $K_{eff}$  déduites dans la zone I pour ces fortes épaisseurs au chapitre 4, et rappelées en section 5.2.3, nous avons donc pu utiliser le modèle pour retrouver l'effet de switch observé dans notre zone spontanément désaimantée (cf fig. 5.26 c). En effet la barrière de nucléation se trouve fortement réduite entre la courbe bleue (pointillés) et la noire (continue), et la barrière d'annihilation est amplifiée.

Dans le cas d'une variation nulle de  $M_s$  avec le champ électrique, nous prévoyons donc l'effet de switch pour une variation de  $\sigma_w$  proche de 8%. La valeur de champ magnétique appliqué a été quelque peu augmentée mais reste faible ( $350\mu T$  dans le cas de la fig. 5.26 c) et celle de  $K_{eff}$  n'a été variée que de 13% en respectant les gammes de valeurs obtenues dans les zones épaisses de l'échantillon ( $K_{eff}$  pris entre  $0,397 - 0,457MJ/m^3$ , voir fig. 5.8). Une variation de l'anisotropie de l'ordre d'une dizaine de % est comprise dans la gamme de variation accessible classiquement avec l'application d'un champ électrique.

Ce modèle de bulle isolée nous permet donc de prédire les variations d'énergie des bulles pour le système à plus fortes épaisseurs. Une étude dans la zone de transition épaisse de l'échantillon serait donc à envisager. Nous reportons dans le tableau 5.2 le bilan des variations des différents paramètres utiles à l'observation d'un switch des bulles skyrmioniques dans notre cas d'étude (à  $\pm 20V$  dans une zone ultra-fine) et pour des épaisseurs plus forte ( $0,6nm$ ).

	$\Delta M_s$	$\Delta K_{eff}$	$\Delta \sigma_w$	$\mu_0 H$
$T_c$ proche de $300K$ ( $t \approx 0,49nm$ )	33%	49%	63%	$150\mu T$
$T_c$ éloignée de $300K$ ( $t \approx 0,6nm$ )	0%	13%	8%	$350\mu T$

TABLE 5.2: Variations des paramètres magnétiques nécessaires pour obtenir un effet de switch des bulles skyrmioniques.

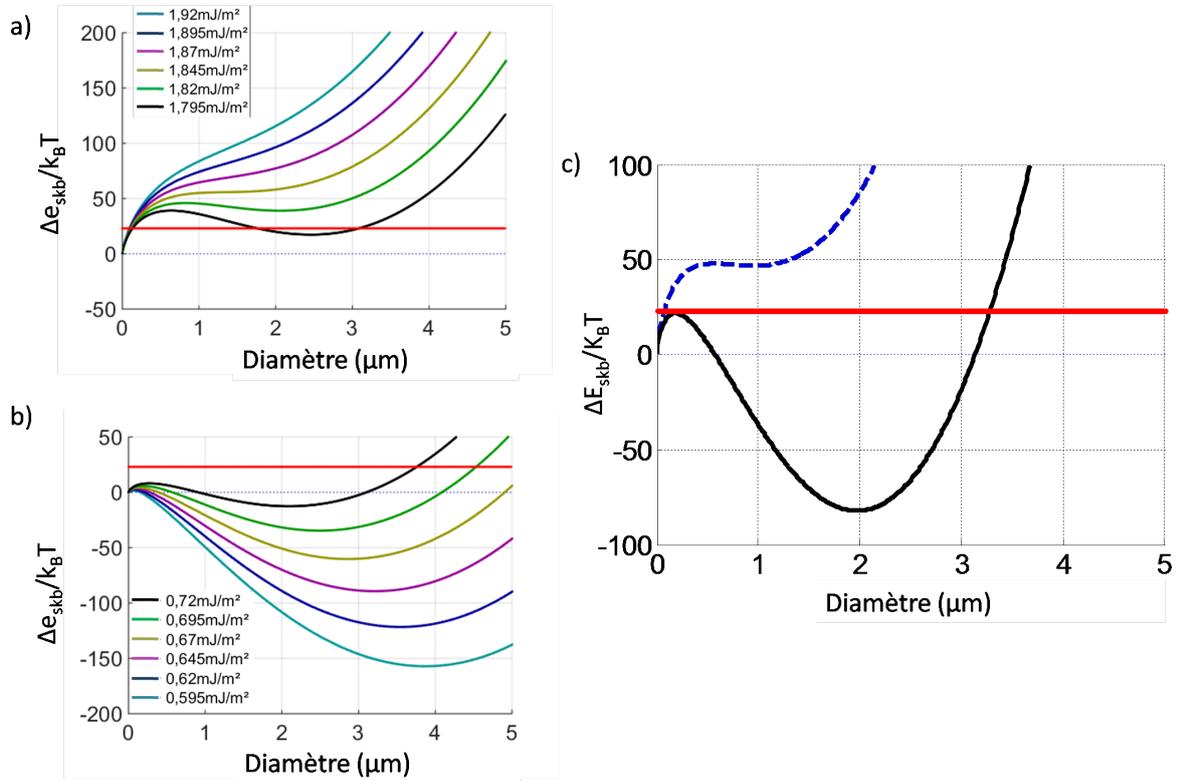


FIGURE 5.26: Evolution de l'énergie en fonction du diamètre pour une bulle isolée en fonction de l'évolution de  $\sigma_\omega$ . Recherche des valeurs de  $\sigma_\omega$  induisant le switch complet ( $\pm 20V$ ) :

a) Pour  $+20V$ . Avec  $\sigma_\omega$  qui augmente. La gamme d'énergie des parois de domaines choisie est telle que la barrière de nucléation  $> 23k_B T_{293}$  et une barrière d'annihilation  $\ll 23k_B T_{293}$ .

b) Pour  $-20V$ . Avec  $\sigma_\omega$  qui diminue. La gamme d'énergie des parois de domaines choisie est telle que les valeurs de diamètres sont proches de nos résultats expérimentaux, avec une barrière de nucléation  $\ll 23k_B T_{293}$  et une barrière d'annihilation  $> 23k_B T_{293}$ .

Avec :  $t = 0,493nm$  ;  $\mu_0 H = 150\mu T$  ;  $M_s(+20V) = 1,03MA/m$  ;  $M_s(-20V) = 0,68MA/m$  ; et  $K_{eff}(+20V) = 0,3965MJ/m^3$  et  $K_{eff}(-20V) = 0,203MJ/m^3$ .

c) Modèle de switch reporté pour une épaisseur plus forte et pour  $M_s$  considéré comme fixe en champ électrique.  $t = 0,6nm$  ;  $\mu_0 H = 350\mu T$  ;  $M_s = 1,1MA/m$  ;  $K_{eff} = 0,457MJ/m^3$  et  $\sigma_\omega = 2,32mJ/m^2$  (bleue, pointillés) ;  $K_{eff} = 0,397MJ/m^3$  et  $\sigma_\omega = 2,14mJ/m^2$  (noire, ligne continue).

## 5.4 Conclusions

Nous avons mis en évidence au cours de ce chapitre une zone spontanément désaimantée en labyrinthe, qui possède une période de domaines diminuant avec l'épaisseur du cobalt. Cette zone est très restreinte en position ( $\approx 400\mu m$ ). L'évolution inattendue de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur par rapport aux modèles existants, a permis de déduire une forte variation de la valeur de l'énergie des parois de domaines  $\sigma_w$  le long de cette zone ultra-fine. Nous avons montré que cette énergie de paroi contient un terme d'interaction Dzyaloshinskii-Moriya dont nous avons donc pu déduire la variation le long de la zone désaimantée.

L'existence d'une constante de Dzyaloshinskii-Moriya  $D$  forte ( $1 - 2mJ/m^2$ ) au sein de cette zone confirme la nature chirale des bulles qui ont été observées sous l'application de très faibles champs magnétiques perpendiculaires à cette structure.

L'application d'un champ électrique sur cette zone a été très efficace et a induit de fortes variations d'énergie d'anisotropie magnétique ( $\approx 300fJ/(V.m)$ ). Cette valeur est assez élevée par rapport à ce qui est généralement reporté dans le cas d'un phénomène d'accumulation de charges. Cette forte valeur est expliquée par la faible température de Curie (proche de la température ambiante) dans cette zone de l'échantillon. Les effets en champ électrique s'en trouvent amplifiés. Cette valeur de  $\beta_{PMA}$  rejoint les fortes valeurs mesurées très récemment par d'autres groupes dans le cas d'effet d'accumulation de charges sur des films ultra-minces (cf chapitre 2) [69].

Un travail de caractérisation complet de la structure magnétique sous champ électrique a mis en évidence un contrôle du champ coercitif, de l'anisotropie magnétique, de l'aimantation et également un contrôle du paramètre  $DMI$ . Les variations de ces propriétés avec la tension se sont avérées être très similaires à un décalage en position le long du gradient d'oxydation de l'échantillon. Les valeurs déduites et groupées pour deux électrodes voisines sont reportées en annexe K et sont très comparables aux profils en position présentés en figure 5.5.

Une analogie avec le processus d'oxydo-réduction a donc été proposé pour chercher les similitudes entre le fait d'accumuler des charges aux interfaces d'une structure et le fait d'oxyder les composants. Nous en avons déduit que le champ électrique a un effet de renforcement/affaiblissement des liaisons  $Co - O$  ce qui modifie les propriétés magnétiques du fait de la forte dépendance de l'anisotropie de surface avec ces liaisons.

Nous soulignons le fait que les résultats obtenus sur le contrôle de la constante  $D$  en champ électrique ne sont que des résultats préliminaires qui ouvrent à des études dont la résolution de mesure aiderait à conclure plus finement sur ce contrôle. En effet, nous avons mis en évidence une variation du  $DMI$  entre 5,5 et 7% pour une gamme de tension de 6V, cependant ces variations sont comprises dans la barre d'erreur du paramètre  $D$ . Le détail de ce calcul d'erreur est donné en annexe J. De fortes valeurs de paramètres  $\beta_{DMI}$  en  $fJ/(V.m)$  ont été déduites ( $312 - 1430fJ/(V.m)$ ), de 1 à 2 ordres de grandeur plus importantes que ce qui avait été prédit théoriquement ( $15,02fJ/(V.m)$ ) [126]. Ce résultat, potentiellement entaché d'erreur, est probablement dû au fait que la  $T_c$  est proche de la température ambiante dans cette zone spontanément désaimantée à température ambiante.

Enfin le contrôle électrique de ces propriétés magnétiques a été mis à profit dans le but de réaliser un dispositif de "switch" de bulles skyrmioniques. Cette zone de fortes variations des propriétés nous permet de venir faire apparaître/disparaître localement des bulles skyrmioniques de manière reproductible et rapide. Cet effet de switch est illustré en figure 5.27. Un modèle analytique de bulle isolée, en considérant des parois de domaines fines par rapport à la taille des

domaines (bulles), a été utilisé pour modéliser cet effet de switch et a permis d'extrapoler cet effet dans une zone où les propriétés sont moins dépendantes de la température à l'ambiante. Cette démonstration a été la première démonstration expérimentale du contrôle de la nucléation de bulles skyrmioniques purement par champ électrique, à température ambiante [133].

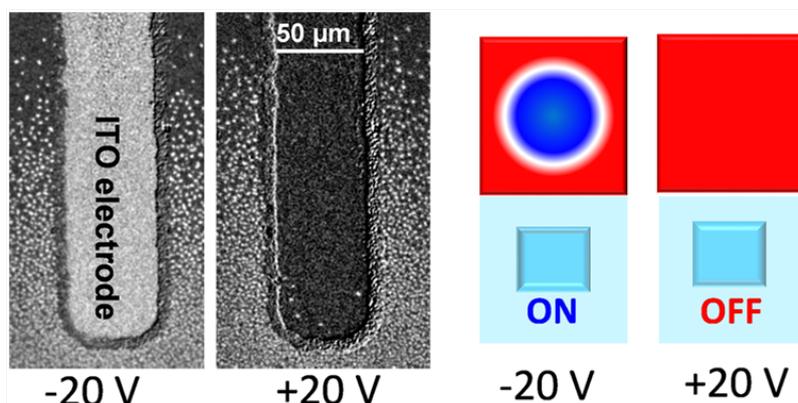


FIGURE 5.27: Illustration de l'effet de switch de bulles skyrmioniques [133].



# Conclusions générales

L'objectif premier de cette thèse était de démontrer le contrôle des propriétés magnétiques d'un film mince de cobalt sous l'application d'un champ électrique sur une structure ultrafine en tri-couche :  $Pt/Co/AlO_x$ . La particularité de nos échantillons était de posséder un gradient d'oxydation pour l'interface entre  $Co$  et  $AlO_x$ , ce qui lui conférait des propriétés évoluant le long de l'échantillon. Ce type d'échantillon permettait donc de pouvoir faire une cartographie de l'évolution de ces paramètres et de cibler les zones qui s'avéreraient être très sensibles sous champ électrique.

D'une part, j'ai donc réalisé une caractérisation très fine et systématique de mes échantillons au moyen de mesures de transport (effet Hall extraordinaire), de mesures magnétiques ( $VSM - SQUID$ ) et de mesures magnéto-optiques (effet Kerr polaire). D'autre part, j'ai focalisé mes mesures en tension sur une zone de forte oxydation de la structure en cherchant à quantifier la variation de tous les paramètres susceptibles d'être modifiés sous l'application de ce champ électrique. Les conditions de stabilité étant très particulières dans cette zone du fait de sa faible valeur de  $T_c$ , nous avons supposé que la plupart des paramètres magnétiques pouvaient être amenés à varier sous tension.

Nous avons donc vérifié que l'oxydation progressive de la couche de  $Co$ , une fois la couche d' $Al$  totalement oxydée, avait un impact sur la valeur d'anisotropie effective  $K_{eff}$  et d'aimantation à saturation  $M_s$  du système. La variation de ces paramètres induit la variation d'autres paramètres mesurés indirectement (tels que l'énergie de parois de domaines  $\sigma_w$ ), ce qui permet d'expliquer l'observation d'une zone spontanément désaimantée, par la formation de domaines périodiques en labyrinthe à température ambiante. La caractérisation précise de cette zone a permis de déduire une variation non négligeable de chacun des paramètres magnétiques avec la progression de l'oxydation. Ceci se traduisait par une forte modification de la période et de la fluctuation temporelle des domaines observés. La variation de ces paramètres sur une distance d'environ  $300\mu m$  le long de la zone désaimantée est résumée dans le tableau 5.3.

En utilisant les mêmes techniques de mesures, nous avons mis en évidence que ces paramètres variaient aussi sous tension pour une position fixe sur cette zone spontanément désaimantée. Les ordres de grandeur de ces variations se trouvaient très proches de ce qui avait été déduit en fonction de la progression de l'oxydation. Nous avons résumé ces variations en tension pour une certaine électrode (électrode  $i$  en fig. 5.15 au chapitre 5, l'électrode qui a été le plus étudiée) dans ce même tableau.

	$\Delta M_s/M_s$	$\Delta H_a/H_a$	$\Delta K_{eff}/K_{eff}$ attendue	$\Delta L/L$	$\Delta \sigma_\omega/\sigma_\omega$	$\Delta A_{ex}/A_{ex}$ supposé	$\Delta D_s/D_s$
$\Delta t/t < 1\%$	6%	5%	$\approx 10\%$	$\approx 60\%$	$\approx 20\%$	12%	5 – 10%
$\Delta V = 6V$	3,5%	10%	$\approx 13,5\%$	43%	13%	7%	5 – 7%

TABLE 5.3: Résumé des valeurs obtenues pour la variation des paramètres magnétiques le long de la zone spontanément désaimantée, pour une variation d'épaisseur  $\Delta t/t < 1\%$ . Et résumé des valeurs obtenues pour une différence de tension de  $6V$ , soit un champ électrique effectif de  $\approx 0,13V/nm$  appliqué sur la structure, pour une variation d'épaisseur nulle  $\Delta t/t = 0\%$  (les mesures ayant été réalisées à épaisseur fixe). La  $T_c$  de cette zone a été mesurée proche de  $360K$ . La variation du facteur  $D_s$  dépend de la valeur prise pour  $A_{ex}$ . La variation de  $K_{eff}$  est qualifiée d'attendue car elle correspond à la somme des variations déduites expérimentalement pour  $H_a$  et sur  $M_s$ .

La variation de ces paramètres sous champ électrique a permis de mettre en évidence un contrôle local de la période des domaines en labyrinthe, mais également de la densité des bulles skyrmioniques observées sous faibles champs magnétiques appliqués sur cette même zone

La nucléation/annihilation de ces bulles à fortes tensions ont pu être observées et expliquées analytiquement. Toutes ces observations ont été réalisées à température ambiante. Au commencement de ma thèse, ce type d'observation n'avait jamais été réalisée expérimentalement. Cela a ensuite été le fruit de nombreuses recherches et une mise en évidence de cette création de skyrmions par champ électrique a été montré à basse température [128] par un groupe utilisant des mesures très locales de  $SP - STM$ . Mon travail de thèse a donné lieu à la première démonstration expérimentale de cet interrupteur à skyrmions contrôlé en tension à température ambiante [133].

## Perspectives

Une étude complète de cette zone spontanément désaimantée à température ambiante a donc été réalisée. Nous avons vu au chapitre 5 que le modèle analytique utilisé pour décrire la nucléation des bulles skyrmioniques prévoyait un effet de switch pour une épaisseur de  $C_0$  légèrement plus importante, pour laquelle la variation de la valeur d'aimantation à saturation serait négligeable en champ électrique (cf tableau 5.2 au chapitre 5). En jouant sur les mêmes paramètres que ceux utilisés au chapitre 5 pour cette valeur d'épaisseur ( $t_{C_0} = 0,6nm$ ), le modèle analytique prévoit aussi une réduction de dimension des bulles skyrmioniques en augmentant légèrement la valeur de champ magnétique appliqué (cf fig. 5.28, où le diamètre d'équilibre de la bulle est réduit d'un facteur 2 par rapport à celui obtenu en figure 5.26 au chapitre 5).

Les études à court terme à réaliser seraient de chercher à observer et à réaliser l'interrupteur à bulles skyrmioniques dans la zone épaisse de nos structures avec gradient d'oxydation. Nous aurions alors un contrôle plus prononcé des bulles créées car l'agitation thermique aurait alors un effet moindre sur leur stabilité. Et nous pourrions envisager, par exemple, leur déplacement à l'aide de l'application d'un courant sur la structure, ou bien une manière de réduire leur dimension en utilisant une valeur de champ magnétique appliqué adéquate.

Un autre projet à court terme envisagé consiste à étudier l'effet de l'application d'un champ électrique sur la propagation sous courant électrique de ces bulles skyrmioniques. Après de pre-

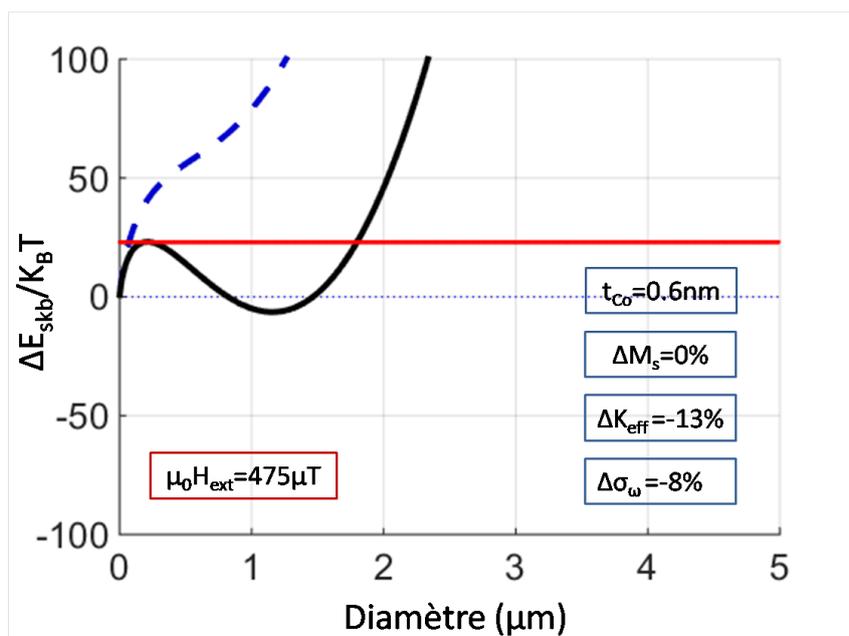


FIGURE 5.28: Modèle de switch reporté pour des valeurs d'épaisseurs plus forte et pour  $M_s$  considéré comme fixe en champ électrique.  $t = 0,6\text{nm}$ ;  $\mu_0 H = 475\mu\text{T}$ ;  $M_s = 1,1\text{MA/m}$ ;  $K_{\text{eff}} = 0,457\text{MJ/m}^3$  et  $\sigma_\omega = 2,32\text{mJ/m}^2$  (bleue, pointillés);  $K_{\text{eff}} = 0,397\text{MJ/m}^3$  et  $\sigma_\omega = 2,14\text{mJ/m}^2$  (noire, ligne continue). La ligne rouge représente la barrière d'activation thermique de  $23k_B T$ .

mières mesures fructueuses sur le déplacement par courant  $DC$  de nos bulles skyrmioniques le long d'une structure dont le design était utile aux mesures d'effet Hall extraordinaire (cf fig. 3.15 au chapitre 3 pour le design et fig. 5.29 pour les observations, pistes de largeur  $10\mu\text{m}$ ), un dessin de masque a été réalisé pour étudier ce déplacement. Il est aussi reporté en figure 5.29. La mesure consisterait à réaliser ce motif sur la zone spontanément désaimantée. Les bulle skyrmioniques pourraient alors être obtenues grâce à l'application d'un faible champ magnétique extérieur, puis déplacées grâce au courant  $DC$  appliqué le long de la piste. Des électrodes d' $ITO$  seraient alors connectées et nous pourrions suivre directement par imagerie en Kerr polaire l'effet de l'application d'une tension sur la vitesse de propagation des bulles.

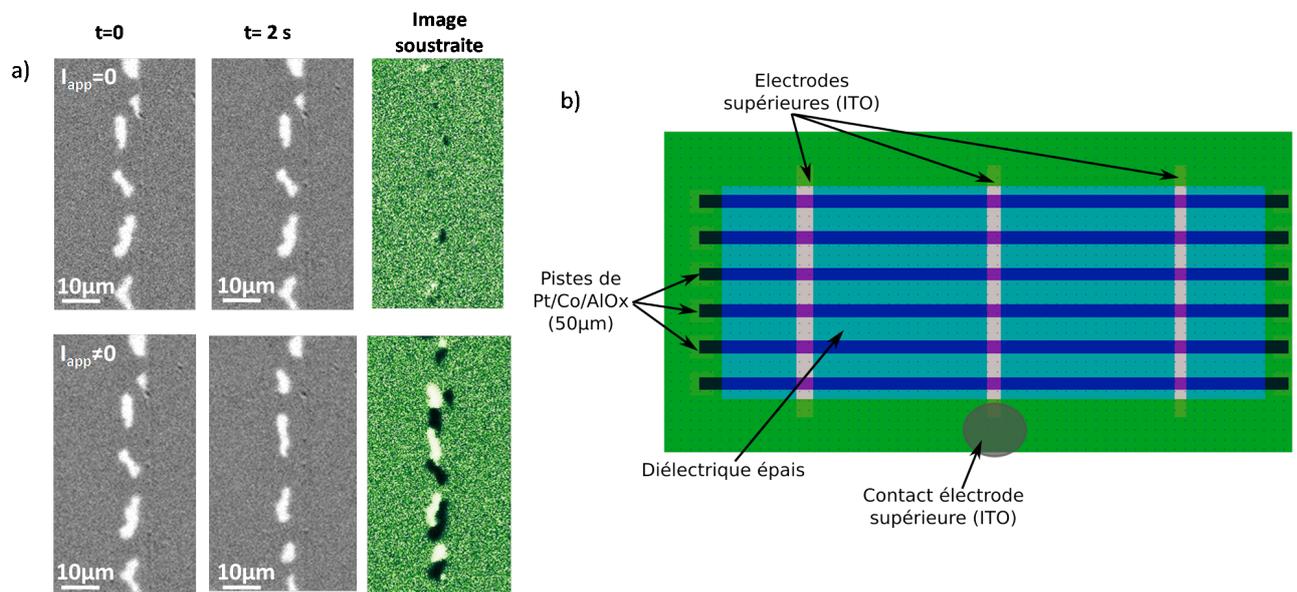


FIGURE 5.29: a) Images en Kerr polaire prises à des intervalles de temps différents sous courant nul ou sous courant  $DC$  de  $150\mu A$ . Les images soustraites font la différence entre l'image à  $t = 2s$  et l'image à  $t = 0$ . Le déplacement des bulles est clairement remarquable lors de l'application du courant.

b) Masque réalisé dédié à l'étude de la propagation des bulles skyrmioniques sous champ électrique.

## Annexe A

# Déduction de $M_s$ des mesures VSM – SQUID à basses températures

L'évolution du signal de  $M_s$  en position est bien propre aux mesures à température ambiante car nous ne retrouvons pas d'évolution de  $M_s$  pour les trois autres températures de mesures au *VSM – SQUID* (pour rappel 150, 200 et 250K). Nous avons pris comme approximation que la variation d'épaisseur de *Co* est assimilée à la pente de gradient de *Al* (0,01nm/mm). La tendance est la même pour ces trois températures : la valeur de  $M_s$  (déduite des mesures *VSM – SQUID* du produit  $M_s \cdot t$ ) reste constante sur la gamme d'épaisseur comprise entre les positions 17mm et 49mm fluctuant autour d'une valeur moyenne entre 1,2 et 1,25MA/m. A basses températures, la valeur de  $M_s$  n'est donc pas fonction de la variation d'épaisseur de *Co*. Tout cela est reporté en figure [A.1](#).

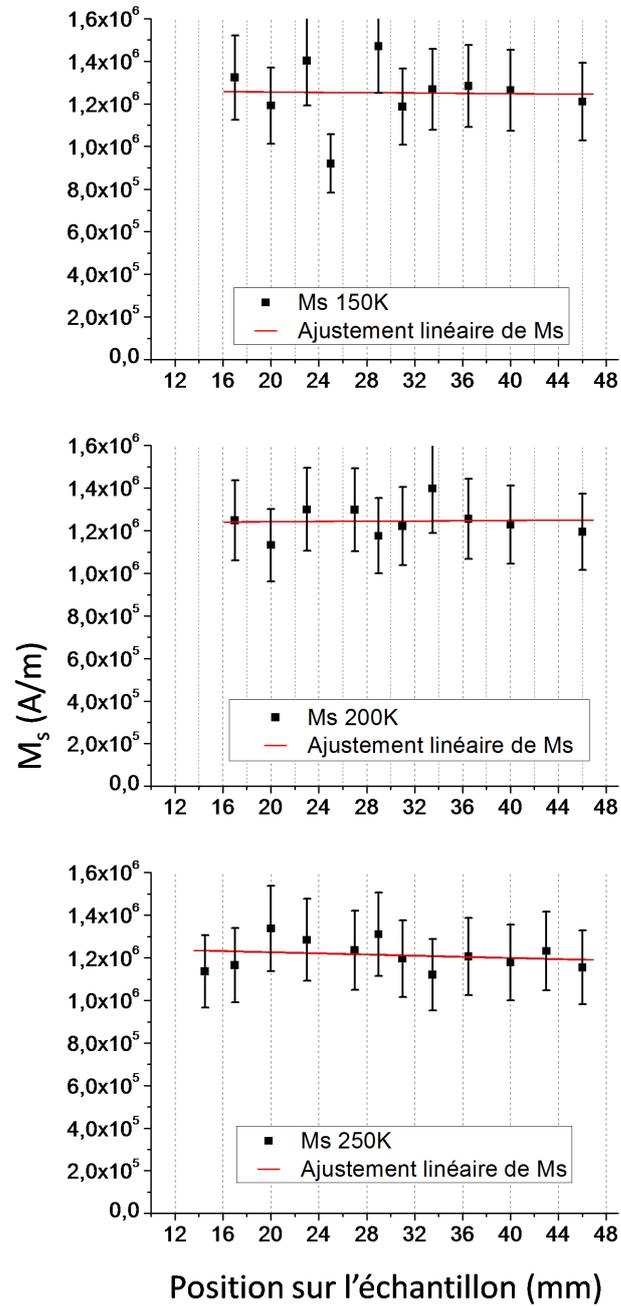


FIGURE A.1:  $M_s$  (A/m) déduites des mesures du produit  $M_s \cdot t$  (au *VSM – SQUID* décrites aux chapitres 3 et 4). Valeurs déduites pour 150, 200 et 250K.

## Annexe B

# Extraction de la constante d'échange $A_{ex}$ le long du gradient d'oxydation

La constante d'échange  $A_{ex}$  a été extraite à partir de la même loi puissance utilisée pour déduire les valeurs de  $T_c$  aux chapitre 4 et 5 (B.1). Elle est rappelée ci-dessous :

$$m(T/T_c) = [1 - s \cdot (T/T_c)^{3/2} - (1 - s) \cdot (T/T_c)^{5/2}]^{1/3} \quad (\text{B.1})$$

Kuz'Min fait aussi le lien entre le paramètre de forme de la courbe,  $s$ , et la constante de raideur des ondes de spin  $D_{sw}$  [93] :

$$D_{sw} = \frac{(0,176\mu_B)^{2/3} \cdot T_c \cdot k_B}{(M_0 \cdot s)^{2/3}}, \quad (\text{B.2})$$

avec  $k_B$  et  $\mu_B$  le magnéton de Bohr et la constante de Boltzmann. Et  $M_0 = M_r(T = 0)$  comme mentionné au chapitre 4. Il est ensuite possible de déduire l'expression de  $A_{ex}$ , à partir de la relation définie par Talagala [134] :  $D_{sw}(J.m^2) = \frac{2g\mu_B A_{ex}}{M_0}$ .  $M_0$  est connu (extrait avec un ajustement linéaire de nos courbes à faibles températures), et  $T_c$  et  $s$  sont déduits du travail de fit réalisé avec la loi puissances (B.1). On obtient :

$$A_{ex} = \left( \frac{M_0 \times 0,176^2}{s^2 \times \mu_B} \right)^{1/3} \times \frac{k_B T_c}{2g}. \quad (\text{B.3})$$

Les valeurs de  $A_{ex}$  ont été déduites de deux manières différentes, comme cela a été annoncé au chapitre 4. Nous avons tout d'abord gardé le facteur de forme  $s$  fixe et égal à 0,13 (comme calculé par Kuz'Min [93]). Les valeurs obtenues sont alors dépendante de  $T_c$  et de  $M_0$  et se trouvent dans une gamme entre 5 et 10pJ/m (cf fig. B.1 - symboles carrés).

Ensuite, nous avons laissé le paramètre  $s$  libre pour réaliser le fit de nos  $m(T)$  avec la loi puissance (B.1). Les bornes sont définies par Kuz'Min :  $0 < s < 2,5$ . Dans ce cas,  $A_{ex}$  dépend alors de  $T_c$ ,  $s$  et  $M_0$  et les valeurs déduites sont très faibles, correspondant à un ordre de grandeur plus faible que ce qui est généralement utilisé dans la littérature [134] (voir les symboles triangles en figure B.1).

Nous avons aussi représenté sur cette figure les valeurs déduites par Metaxas et al. [96] en guise de comparaison. Leurs valeurs d'échange ont été obtenues grâce à leurs valeurs de  $T_c$  pour des couches ultra-fines de  $Co$ , en utilisant un modèle de film en deux dimensions défini par Bruno [135]. Elles sont 2 à 7 fois plus importantes que les valeurs déduites de nos mesures en

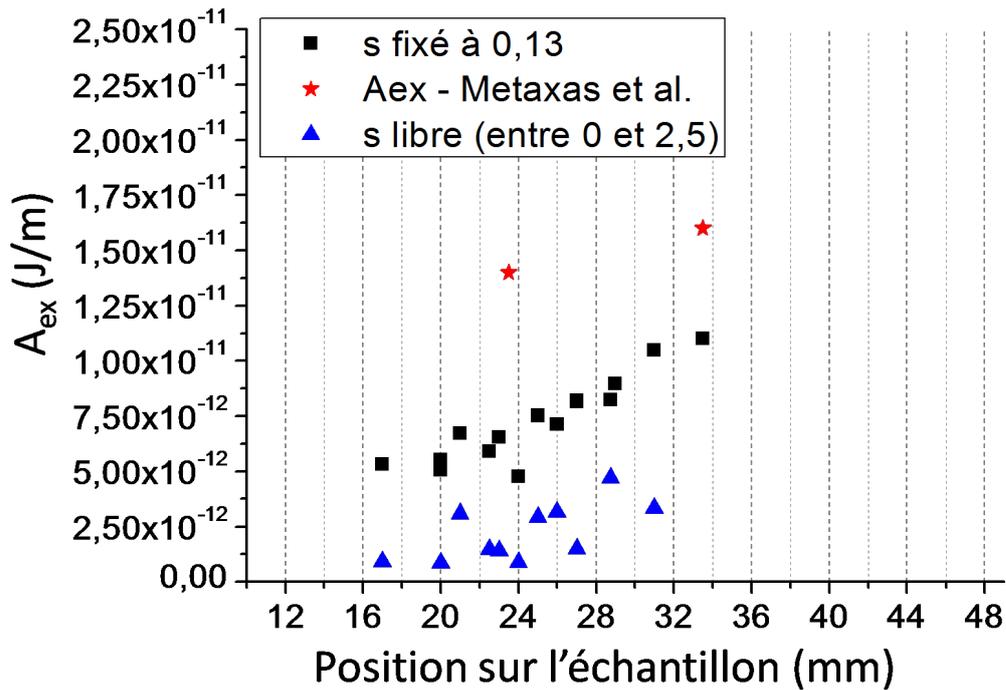


FIGURE B.1: Extraction de la constante d'échange  $A_{ex}$  ( $pJ/m$ ) en référence aux relations de Kuz'Min et Talagala [93, 134], en fonction de la position sur l'échantillon ( $mm$ ). Les valeurs mesurées par Metaxas [96] pour des épaisseurs de  $Co$  de 0, 5 et 0, 6nm sont représentées par des étoiles.

utilisant le modèle de Kuz'Min.

Nous avons extrait ces valeurs pour les mesures en température pour lesquelles nous étions précis dans l'extraction de  $T_c$  (donc pour des positions inférieures ou égales à 31mm). A nouveau, pour les plus fortes épaisseur de  $Co$ , il nous est difficile de conclure car le travail d'ajustement avec (B.1) n'est pas assez précis (la gamme de température balayée étant trop faible).

La tendance générale observée est que la constante d'échange diminue avec l'épaisseur de  $Co$ . La principale différence est que la valeur de  $A_{ex}$  se voit triplée si l'on choisit de fixer  $s$  au lieu de le garder libre. Cet encadrement ( $0 < s < 2, 5$ ) n'avait donc que peu d'impact pour la déduction de la valeur de  $T_c$  présentée aux chapitre 4 et 5, mais c'est un facteur non-négligeable pour déduire la valeur de l'échange.

Enfin, nous avons représenté en figure B.2 le facteur  $s$  déduit du travail de fit en fonction de la position sur l'échantillon. Comme mentionné au chapitre 4, sa valeur augmente fortement aux alentours de la zone de transition fine. Cela pourrait indiquer que dans le cas de couches fines, le terme en  $(T/T_c)^{3/2}$  (décrivant la loi de Bloch) gagne en importance pour des valeurs de températures suffisamment proches de la  $T_c$  de l'échantillon.

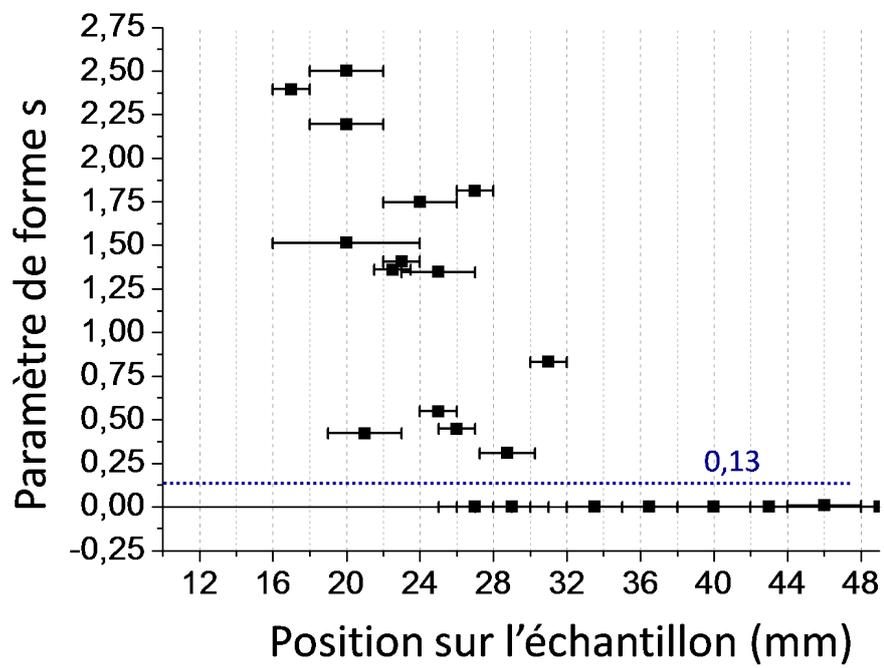


FIGURE B.2: Facteur de forme  $s$  (sans unité) déduit de la loi puissances de Kuz'Min (B.1) en fonction de la position sur l'échantillon ( $mm$ ).



## Annexe C

# Vérification de l'allure de la variation de $M_s$ $l_f$ grâce aux mesures de transport (*EHE*)

Lors des mesures de magnéto-transport d'effet Hall extraordinaire (*EHE*) sur nos échantillons lithographiés en croix de Hall (cf chapitre 3, fig. 3.15), nous avons relevé pour chacune des positions et des températures la valeur du saut du signal à champ magnétique nul, et nous pouvons la comparer à ceux relevés en Kerr polaire à  $300K$  ainsi qu'à l'allure de  $M_s$   $l_f$  déduite des mesures *VSM* – *SQUID* au chapitre 4. Grâce au fait que nous ayons accès à de forts champ magnétiques pour ce type de mesure (jusqu'à  $5T$ ), nous sommes certains que l'aimantation est bien dirigée dans le plan de l'échantillon à très fort champ et relaxe perpendiculairement à champ nul. Le saut du signal de la tension de Hall que nous observons à champ magnétique nul, peut donc être considéré comme directement proportionnel à la composante rémanente perpendiculaire de l'aimantation. Nous pouvons tout de même émettre une certaine réserve quant à l'évolution du signal *EHE* en fonction de l'épaisseur variable d'oxyde et de celle de *Co*; seulement, le gradient d'épaisseur étant très faible, nous choisissons de négliger ces effets supplémentaires. Nous avons tracé son évolution en position et en température (voir figure C.1). La chute de l'aimantation qui s'accélère dans la zone de forte oxydation se retrouve bien dans le tracé à température ambiante.

Cela est donc une seconde manière (ou vérification) d'estimer l'allure de la variation de  $M_r$  en fonction de la position sur l'échantillon. Le fait de pouvoir vérifier cela en température nous donne aussi accès à une vérification pour la valeur de  $T_c$ . En effet, nous remarquons que le signal à  $280K$  est beaucoup plus fort à  $20mm$  que celui à  $300K$ . Dans ce cas, la température de mesure est suffisamment éloignée de la  $T_c$  ( $305K$ ) pour décaler l'observation de la transition vers l'état paramagnétique vers les zones de plus forte oxydation.

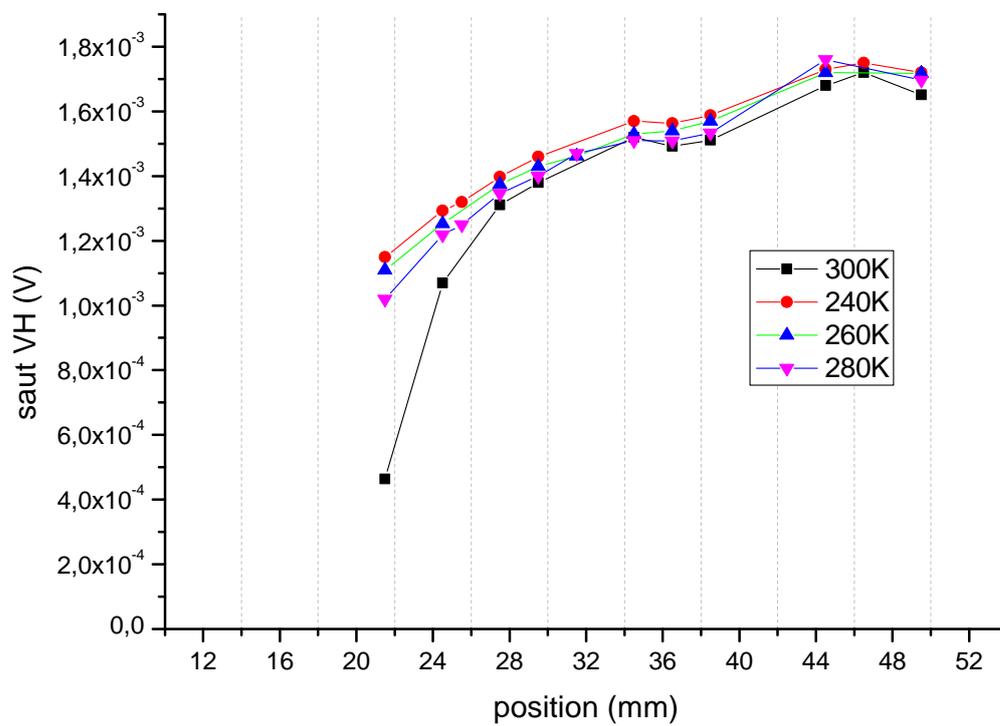


FIGURE C.1: Saut du signal de la tension de Hall ( $VH$ ) à champ magnétique nul en fonction de la position sur l'échantillon (*positions et zones équivalentes à celles utilisées dans les chapitres 4 et 5*)

# Annexe D

## Méthodes d'extraction du champ d'anisotropie en utilisant les mesures *EHE* et en Kerr polaire avec un champ planaire

Nous allons mentionner les deux méthodes qui ont été utilisées en parallèle pour déterminer avec le plus de précision possible le champ d'anisotropie  $H_a$ , et ainsi déduire la constante d'anisotropie  $K_{eff}$ , connaissant l'évolution de  $M_s$ , déduite des mesures *VSM – SQUID* au chapitre 4. Nous précisons ensuite quelle méthode a été la plus appropriée selon les zones de l'échantillon mesurées.

**Détermination directe du champ d'anisotropie par le modèle de renversement de type Stoner-Wohlfarth (domaine unique)** Pour chacun des cycles  $M_z(H_{IP})$  obtenus, nous sommes en mesure d'extraire  $\mu_0 H_a$ , en supposant un retournement de notre aimantation de type domaine unique et grâce au modèle de renversement de type Stoner-Wohlfarth décrit au chapitre 1. Il est important de noter que le modèle de renversement utilisé, s'applique très bien à la zone décrite au début du chapitre 4 comme la zone d'oxydation optimale (zone *B*), mais que ce n'est qu'une approximation pour les zones de transition (sur et sous-oxydation), pour lesquelles l'aimantation ne peut être considérée comme uniforme. En effet, pour ces zones, le procédé de renversement est dominé par la nucléation (comme décrit au paragraphe 4.2.1 du chapitre 4) et le renversement de type domaine unique ne s'applique plus. Les mesures ainsi extraites sont des estimations dans ces zones là, plutôt que des valeurs précises.

Dans le cas des cycles  $M_z(H_{IP})$  réalisés en Kerr polaire, la principale difficulté rencontrée pour l'extraction de l'anisotropie est due au fait que nous n'avons pas accès à des champs aussi forts qu'avec les mesures de magnéto-transport. Pour les zones de forte anisotropie (zone *B*), nous n'avons donc pas accès à la complète saturation de l'aimantation dans le plan de l'échantillon. Le renversement n'est donc pas complet et nous ne pouvons utiliser les courbes  $M_z(H_{IP})$  pour déterminer correctement  $H_a$ . Ces mesures seront donc utilisées dans les zones de transition pour lesquelles l'anisotropie diminue et pour lesquelles nous sommes capables d'observer le quasi renversement de l'aimantation dans le plan de l'échantillon avec nos champs maximum applicables ( $\approx 750mT$ ). Cela correspond aux positions comprises entre 19, 5 et 24mm (cf figure D.1 où sont représentés les cycles bruts obtenus).

Comme décrit au chapitre 1, le modèle de Stoner-Wohlfarth permet de reproduire la rotation de l'aimantation dans la direction de l'axe difficile, en jouant sur la valeur du champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a = 2K_{eff}/M_s$ . Ceci, en minimisant l'énergie par unité de volume du système :

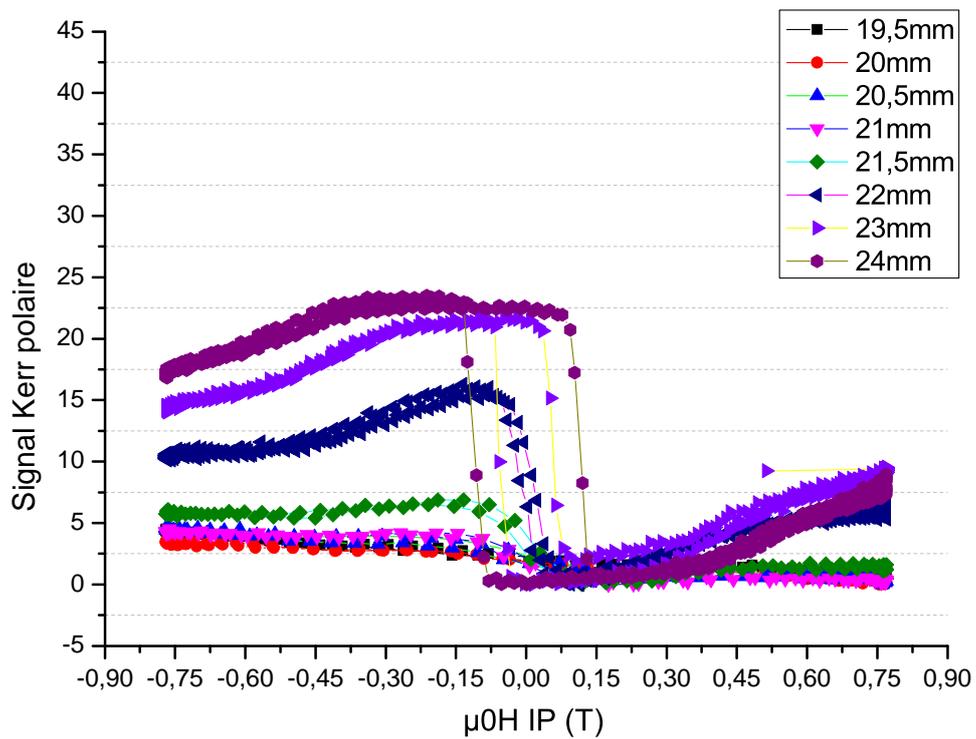


FIGURE D.1: Cycles  $M_z(H_{IP})$  obtenus en Kerr polaire pour la zone de transition fine. Perte du signal magnétique aux alentours de 21mm (positions et zones équivalentes à celles utilisées dans les chapitres 4 et 5).

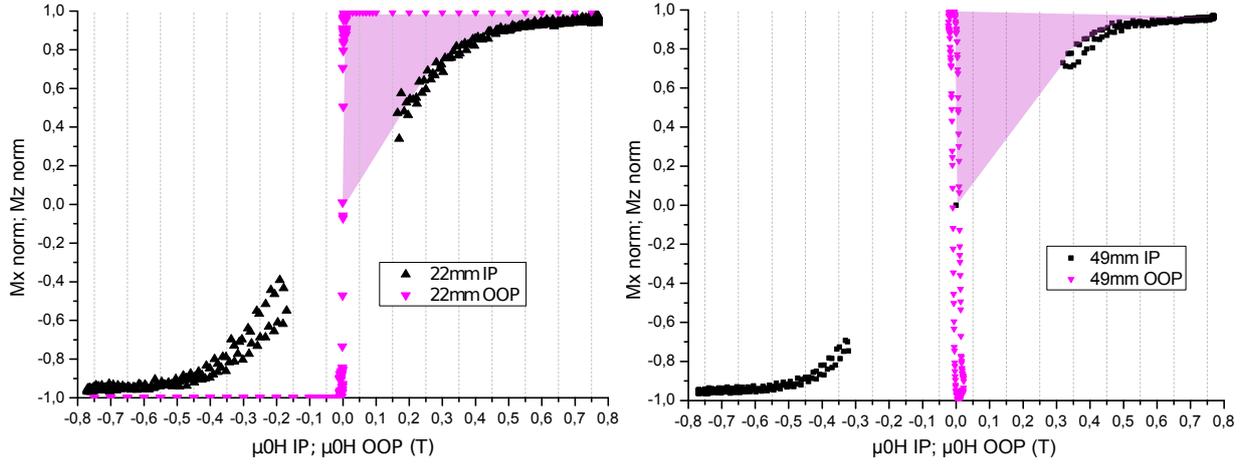


FIGURE D.2:

Gauche :  $M_z(H_{OOP})$  et  $M_x(H_{IP})$  pour la position 22mm, zone considérée comme sur-oxydée.  
Droite :  $M_z(H_{OOP})$  et  $M_x(H_{IP})$  pour la position 49mm, zone considérée comme sous-oxydée.

$E = \mu_0 H_a / 2 \cdot \sin^2(\theta) - \mu_0 H_{IP} \cdot \cos(\theta - \phi)$ , avec  $\theta$  l'angle entre la direction de l'aimantation et l'axe facile d'anisotropie. Et  $\phi$ , celui entre cet axe facile et la direction du champ magnétique planaire appliqué lors des cycles  $\mu_0 H_{IP}$ .

**Détermination de l'énergie d'anisotropie magnétique en exprimant la composante planaire de l'aimantation** Grâce aux cycles  $M_z(H_{IP})$ , nous sommes capables de déduire la composante planaire, notée  $M_x$  de l'aimantation. Nous l'exprimons comme :  $M_{x(norm)} = \frac{M_x}{M_s} = \sin(\text{Arccos}(\frac{M_z}{M_s})) = \sin(\text{Arccos}(M_{z(norm)}))$ . Nous avons donc déduit de nos mesures de cycles  $M_z(H_{IP})$  (réalisés en EHE et en Kerr polaire) les composantes  $M_{x(norm)}(pos)$ , avec  $pos$  la position en mm sur l'échantillon.

La différence d'aire sous les courbes  $M_z(H_{OOP})$  et  $M_x(H_{IP})$  correspond toujours à la valeur de l'anisotropie effective  $K_{eff}$  [15] (cf chapitre 1 pour la définition mathématique de l'anisotropie effective). Donc cette méthode est un moyen de venir compléter, ou vérifier les mesures déduites du modèle SW. En effet :  $K_{eff}(J/m^3) = -M_s \int_0^1 \mu_0 H_{IP} dM_{x(norm)}$ . Nous avons représenté pour deux positions intéressantes (22 et 49mm, cf figure D.2) la superposition des cycles Kerr  $M_z(H_{OOP})$  et  $M_x(H_{IP})$  et mis en évidence l'aire considérée. Nous remarquons bien que la saturation de l'aimantation hors du plan de l'échantillon est quasiment instantanée lors de l'application d'un champ perpendiculaire, il représente donc bien l'axe de facile aimantation et nous pouvons déduire que l'intégration du simple cycle  $M_x(H_{IP})$  nous permet de déduire  $K_{eff}$  directement sans réaliser la différence des deux aires (l'aire sous la courbe de  $M_z(H_{OOP})$  étant négligeable).

Un exemple de courbe déduite pour  $M_x(H_{IP})$  entière (en gardant le signal à faible champ) est donné en figure D.3. Nous remarquons bien que pour de faibles valeurs de champ magnétique, le renversement, donc la partie de la courbe due au champ coercitif, se manifeste par des sauts dans le signal déduit pour  $M_x(H_{IP})$ . Il nous faut donc ajuster le centre de ces courbes avant de pouvoir extraire une valeur d'intégrale de manière claire.

Pour ce faire, nous choisissons d'assimiler nos courbes à un profil de type  $\text{Arctan}(\mu_0 H_{IP})$  ou  $\text{tan}(\mu_0 H_{IP})$  (selon l'allure du cycle, qui est dépendante de la position de mesure). Le profil

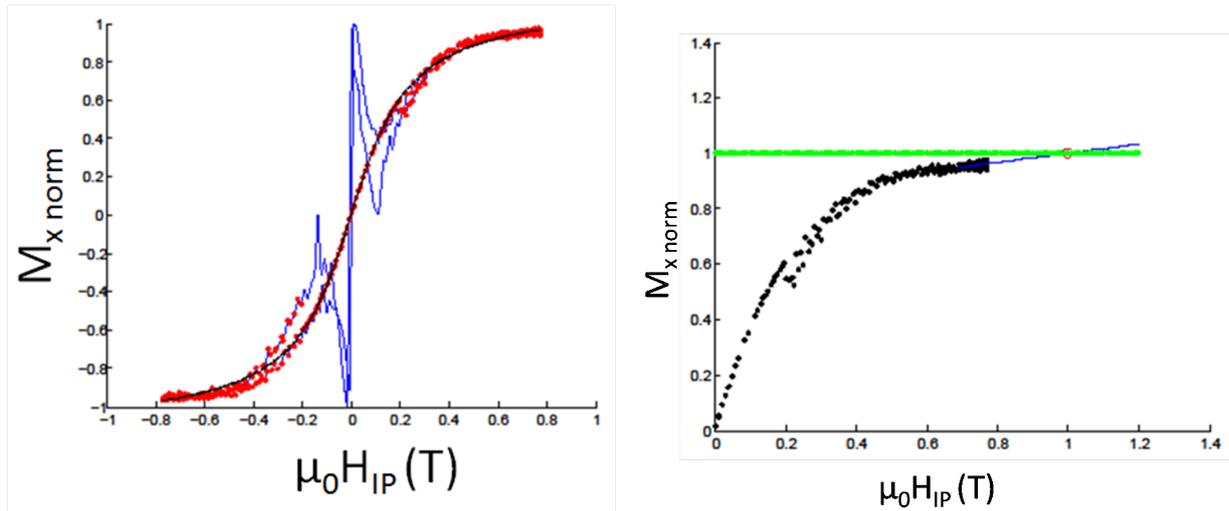


FIGURE D.3:

Gauche :  $M_x(H_{IP})$  pour la position 22mm, zone considérée comme sur-oxydée et fit ( $Arctan(\mu_0 H_{IP})$ ) correspondant.

Droite : Extrapolation du champ de saturation  $H_s IP$  pour définir les bornes correctes de l'intégrale.

utilisé a été adapté selon le type de cycle. Nous avons utilisé un profil de type *Arctan* pour les zones de transition sur et sous-oxydées et avons utilisé un profil plutôt de type *tan* (quasiment linéaire) pour les positions présentant une oxydation optimale (zone très perpendiculaire). Le type de profil ainsi ajusté au centre (à faibles champs) est représenté en figure D.4 pour deux zones différentes. C'est donc l'intégration du profil final (données avec ajustement au centre) qui est réalisée.

Nous procédons donc à cet ajustement à faibles champs magnétiques pour chacune de nos courbes et pouvons extraire des valeurs d'intégrales. Nous prenons la précaution d'extrapoler notre signal à  $M_x = 1$  de manière à avoir la valeur totale pour l'intégrale en allant jusqu'à la saturation (cf figure D.3). Connaissant l'évolution de  $M_s \cdot t$  et donc de  $M_s$ , grâce aux mesures VSM-SQUID, nous pouvons déduire  $\mu_0 H_a$  ainsi que l'anisotropie effective  $K_{eff}$  de ces valeurs d'intégrales pour chacune de ces positions.

Nous remarquons que, selon les zones prises en compte, la technique la plus adaptée pour extraire le champ d'anisotropie diffère. Dans la zone dite de "sous-oxydation", la méthode d'intégration des courbes en axe difficile correspond bien aux valeurs de champ d'anisotropie extraites des mesures *EHE*, elle est donc bien adaptée. Cependant, la chute du champ d'anisotropie est plus remarquable dans la zone dite de "sur-oxydation" en utilisant le modèle d'extraction de type renversement uniforme.

Nos valeurs sont donc la moyenne des valeurs extraites de ces deux méthodes lorsque les cycles le permettaient.

Nous avons aussi utilisé cette méthode d'intégration pour les signaux à champs forts obtenus en *VSM - SQUID* (planaire et perpendiculaire), cependant nos signaux étant très faibles, ils n'ont pas donné de résultats suffisamment probants et reproductibles pour déduire le champ d'anisotropie avec la méthode d'intégration décrite juste au-dessus.

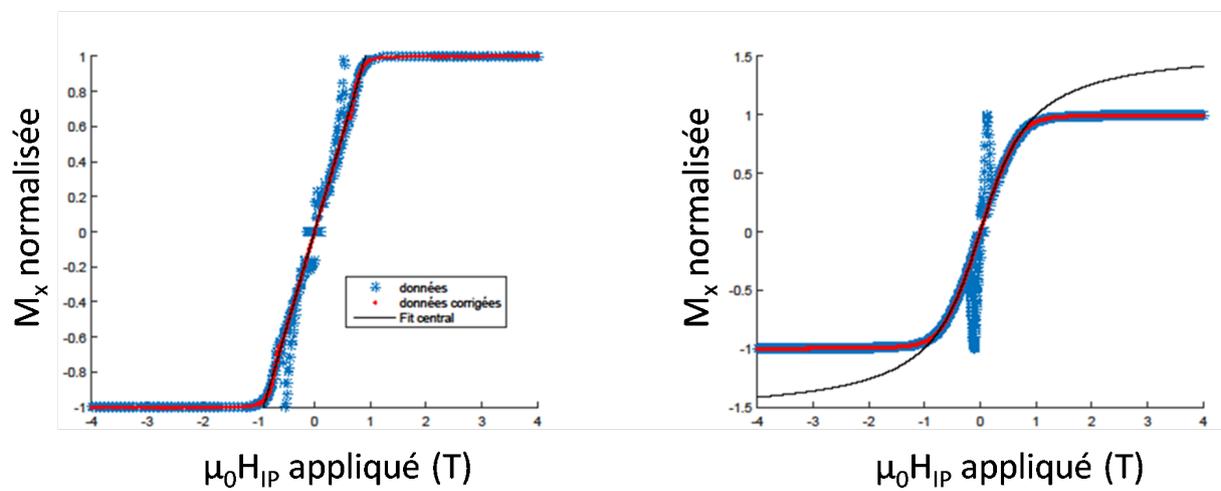


FIGURE D.4:

Gauche :  $M_x(H_{IP})$  pour la position 38, 5mm et fit ( $\tan(\mu_0 H_{IP})$ ) correspondant pour ajustement de la partie centrale.

Droite :  $M_x(H_{IP})$  pour la position 49, 5mm et fit ( $\text{Arctan}(\mu_0 H_{IP})$ ) correspondant pour ajustement de la partie centrale.



# Annexe E

## Évolution du champ de saturation planaire

Grâce aux mesures réalisées à forts champs magnétiques (mesures *VSM – SQUID* et mesures *EHE*), nous avons été capables d'extraire les valeurs de champ de saturation en axe difficile (axe parallèle à la surface de l'échantillon).

A nouveau, nous devons être prudents en traitant nos mesures car nous avons vu que, le signal magnétique étant très faible, les mesures *VSM – SQUID* n'étaient pas appropriées pour tout type d'extraction de valeurs. De plus, le pas de champ utilisé pour les mesures *VSM – SQUID* peut s'avérer être trop faible lors de réorientation soudaine de l'aimantation, ce qui peut venir aussi jouer sur l'allure du profil enregistré ou bien sur la valeur de  $H_s(IP)$  déduite.

Nous représentons en figure E.1 les valeurs de champs de saturation planaires déduits comme les champs pour lesquels la composante de l'aimantation planaire normalisée  $M_x(norm)$  atteint la valeur de 1. Nous remarquons que le profil déduit des mesures *EHE* est cohérent avec les mesures de champs d'anisotropie extraits précédemment. Nous avons des valeurs aux alentours de  $1 - 1,1T$  pour les zones dont les positions sont comprises entre 23 et 42mm, et nous observons que la saturation en axe difficile se situe à plus fort champ pour la zone de transition dite de "sous-oxydation" (pour des positions au-dessus de 44mm). Cette augmentation du champ nécessaire à la saturation planaire coïncide avec les variations observées pour les valeurs de  $H_a$  (qui augmente) et de  $K_s$  (qui diminue légèrement). Pour cette zone, l'épaisseur de *Co* étant alors constante, les variations de ces paramètres ont été annoncés comme objet de la variation de l'interface considérée. La multiplication de liaisons de type *Co – Al* au détriment des liaisons de type *Co – O* modifie fortement le profil de l'interface considérée. La distribution de champs coercitifs observée au chapitre 4 présageait un profil de type multi-domaines dans cette zone particulière. Le modèle de renversement de type domaine unique n'est donc pas applicable et nous sommes dans le cas où les barrières d'énergie sont plus fortes pour saturer le système à la fois hors du plan et dans le plan de l'échantillon. De plus, pour les positions comprises entre 39 et 44mm, les valeurs de  $H_c$  relevées sur cet échantillon sont les valeurs maximales. Le système est donc très perpendiculaire pour ces positions et donc plus difficile à saturer dans le plan que pour les positions plus oxydées.

A nouveau, le champ de saturation planaire que nous avons tenté d'extraire à partir de cycles obtenus en configuration planaire en *VSM – SQUID* n'a pas donné de résultats probants. La faiblesse du signal étant encore plus perceptible dans cette orientation, le centrage des échantillons était une grosse difficulté.

Ces mesures déduites pour  $H_s(IP)$  sont donc une bonne méthode pour déduire assez rapide-

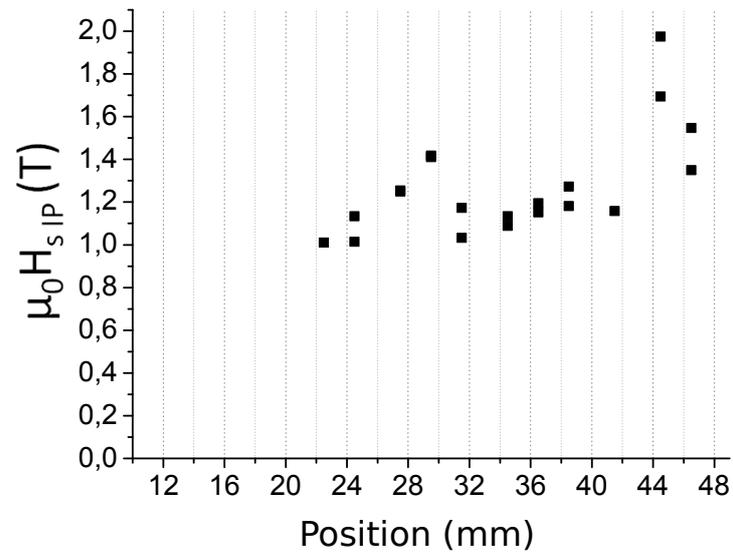


FIGURE E.1: Valeurs de  $H_s(IP)$  déduites des mesures réalisées à champs magnétiques forts (mesures *EHE*).

ment l'ordre de grandeur et l'allure de la saturation en fonction de la position sur l'échantillon, avant de réaliser une extraction fine de l'anisotropie comme décrite dans la partie précédente.

# Annexe F

## Modification de la vitesse de propagation des parois

L'idée est de venir comparer l'évolution de cette barrière d'énergie avec celle de l'anisotropie effective décrite au chapitre 4. Nous pourrions ainsi établir s'il y a un lien direct entre ces deux grandeurs, comme cela est souvent mentionné dans la littérature pour cette gamme de vitesse.

Pour le régime de reptation, la vitesse de la paroi varie souvent comme :

$$v = v_0 \cdot \exp \left[ - \left( \frac{U_c}{k_B T} \right) \cdot \left( \frac{H_{dep}}{H} \right)^{1/4} \right] = v_0 \cdot \exp[-K \cdot H^{-1/4}] \text{ avec } K = \frac{U_c}{k_B T} H_{dep}^{1/4} \text{ en}$$

$T^{-1/4}$  [96]. En connaissant la température de mesure, ici la température ambiante  $300K$ , la valeur de  $K$  nous permet donc de revenir au produit de la barrière d'énergie  $U_c$  avec le champ de dépiégeage  $H_{dep}$  à la puissance  $1/4$ , déduisible pour des mesures à plus forts champs appliqués. Nous devons donc d'abord vérifier que cette loi de vitesse s'applique pour nos gammes de champs appliqués. Pour cela, nous avons procédé comme suit : après saturation avec un champ magnétique positif (contraste clair), nous avons appliqué un pulse de champ magnétique hors plan dans l'autre sens (négatif, contraste foncé) assez fort de manière à créer un centre de nucléation. Puis nous avons appliqué des pulses (négatifs, contraste foncé) de champs magnétiques plus faibles, à intervalles de temps réguliers, en enregistrant une image Kerr pour chacun. Notre échantillon ayant été gravé au préalable, avec des motifs de lignes perpendiculaires au gradient d'oxydation, nous avons ainsi pu étudier la variation de vitesse de manière assez précise sans être gênés par l'évolution des paramètres magnétiques le long de ce gradient. Un exemple d'images est donnée en figure F.1.

Nous enregistrons ensuite le profil d'intensité Kerr après avoir sélectionné un barreau. Puis nous repérons pour quelle position sur l'image nous avons le saut d'intensité, correspondant à l'extrémité de la paroi du domaine magnétique. Nous enregistrons cette position en fonction du pas en temps  $\delta t$  utilisé pour le pulse et nous pouvons en déduire la vitesse de la paroi. Nous montrons en figure F.2 un exemple de profil d'intensité obtenu en superposant les images successives pour le barreau mis en évidence sur la figure F.1.

Nous avons donc réalisé ce type de mesure tout au long de notre échantillon en cherchant à vérifier si nous sommes bien en régime de reptation. Pour cela, nous avons tracé  $\ln(v)$  en fonction de  $H^{-1/4}$  (cf fig. F.3 pour de nombreuses positions le long de l'échantillon). Le régime de reptation est bien celui dominant pour ces gammes de champs appliqués car nous obtenons la dépendance linéaire attendue.

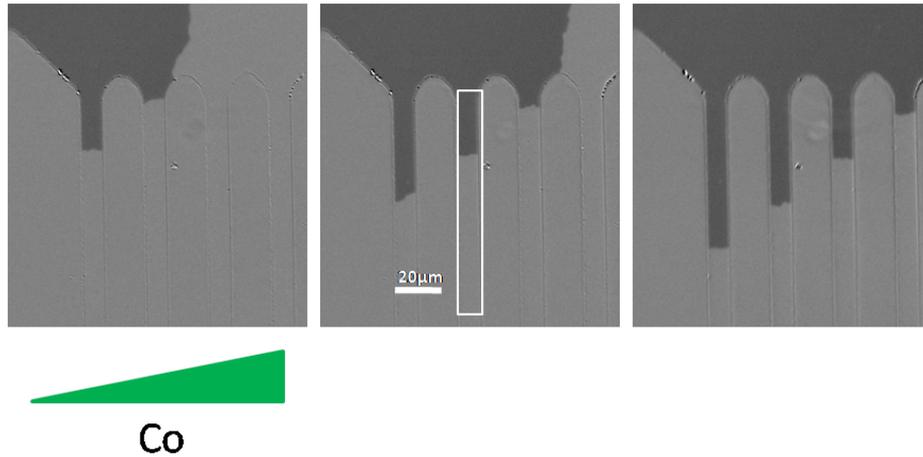


FIGURE F.1: Images Kerr polaire réalisée après nucléation (gauche), après trois pulses de  $500ms$  d'un champ de valeur  $\mu_0 H = 1,45mT$  (milieu) puis après six de ces mêmes pulses (droite). Zone II (position  $30mm$ ).

Ce type de caractérisation ne nous donne pas accès à un paramètre magnétique précis, mais nous a permis de vérifier une allure pour cette constante  $K$  dépendant à la fois de la barrière d'énergie de dépiégeage, et du champ critique utile à ce dépiégeage. Ce champ et cette barrière d'énergie se sont avérés être très faible dans la zone II dite de "sur-oxydation" définie au chapitre 4 (pente  $K$  de plus en plus faible en approchant cette zone (environ  $23mm$ )) et l'extraction propre de vitesse de propagation n'a pas été réalisable dans cette zone pour la gamme de champs utilisés pour nos pulses ; le champ de saturation perpendiculaire s'avérant être beaucoup trop faible pour cette zone. A l'inverse, ces deux paramètres sont très importants dans la zone I de sous-oxydation (pente  $K$  plus forte pour des positions aux alentours de  $40mm$ ), et, malgré des temps longs utilisés pour les pulses de champs, nous n'avons là encore, pas été en mesure d'extraire des vitesses de parois avec un grande précision, le déplacement de cette paroi étant très limité. De plus, nous avons vu que pour cette zone, le procédé dominant pour le renversement de l'aimantation est un procédé de nucléation de nombreux volumes d'activation. La propagation des parois est très réduite, voire quasi inexistante dans cette zone (voir figure 4.2 b) au chapitre 4).

La barrière d'énergie  $U_c$  ne peut pas être définie simplement et est fonction de nombreux paramètres tels que le paramètre de désordre, la force de piégeage d'un défaut, la densité de ces défauts ou encore l'énergie utile à créer la paroi de domaine [98]. Parmi ces termes, certains sont fonctions de la constante d'anisotropie effective  $K_{eff}$ , et d'autres sont propres uniquement à l'environnement de dépôt et de mesure. Nous ne pouvons donc pas conclure de manière simple, que l'allure obtenue pour cette valeur de pente  $K$  soit directement liée à la tendance de l'anisotropie effective le long du gradient d'oxydation. De plus, nous avons remarqué que le pré-facteur de l'expression  $\ln(v_0)$  se trouve être lui aussi variable le long de l'échantillon, ce qui rend l'interprétation difficile. Notons tout de même que cette diminution progressive de  $K$  est semblable à l'évolution du champ coercitif déterminée au début du chapitre 4.

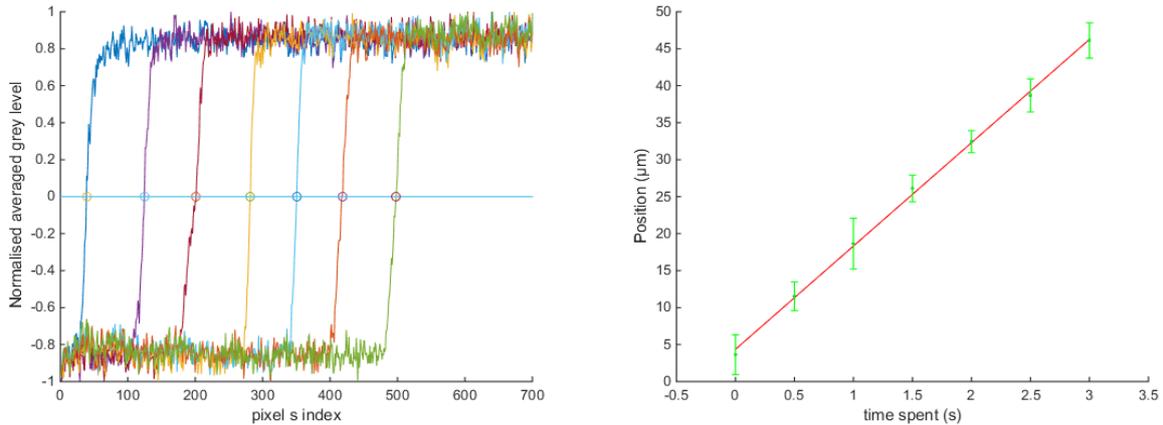


FIGURE F.2:

Gauche : Niveau de gris normalisé pour 7 images successives prises à intervalle de  $500ms$  (en appliquant à chaque fois un pulse de  $1,45mT$ ) pour la positions  $30mm$ . Ici 1 pixel correspond à  $0,0926\mu m$ .

Droite : Position de saut de niveau de gris reportée en fonction du temps  $t$ . Les barres d'erreur ont été évaluées pour chacune des images lors du relevé du saut de niveau de gris (un programme de traitement a été développé au cours de ma thèse pour cela).

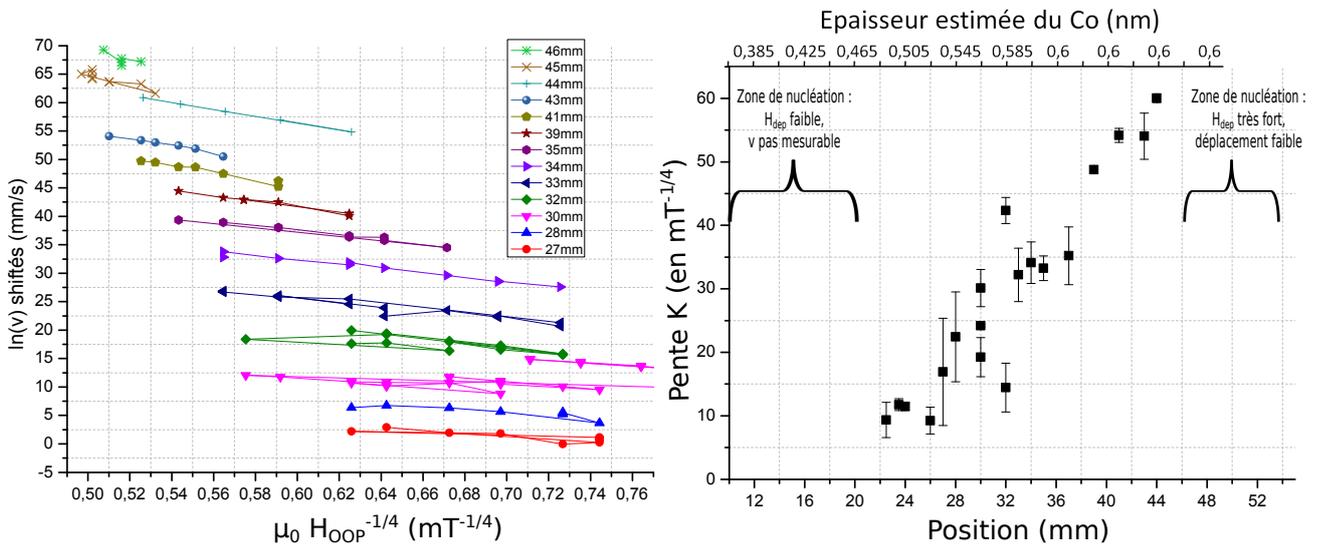


FIGURE F.3:

Gauche : Signaux obtenus pour  $\ln(v)$  en fonction de  $\mu_0 H_{OOP}^{-1/4}$  pour différentes positions sur l'échantillon.

Droite : Valeur des pentes déduites pour chacune des positions sur l'échantillon. Les valeurs des barres d'erreur sont déterminées par le fit linéaire.



# Annexe G

## Transition de type réorientation de spin

Nous avons été particulièrement attentifs au travail de Bergeard [99], qui a réalisé une étude poussée de l'évolution de la configuration en domaines aux alentours de la température de réorientation de spin. Il a été l'un des premiers à confronter expérimentalement les modèles bien connus d'étude en température de transition de réorientation perpendiculaire/planaire, aux études de l'évolution de la structure en domaines associée pour les températures les plus proches de la réorientation. Il a ensuite choisi de présenter ses résultats en faisant la parallèle avec des théories déjà existantes et analogues à l'établissement du diagramme de phase pour les cristaux liquides par exemple [136]. Ses travaux serviront comme base de récit pour ce paragraphe.

Il existe deux scénarios possibles concernant la transition qui s'opère entre l'état en domaines en labyrinthe et une phase paramagnétique (fluctuante et désordonnée). La nature des défauts ainsi que les paramètres d'ordres considérés aident à construire le diagramme de phases ainsi qu'à définir les différentes températures de transition entre ces états.

### G.1 Phase smectique - Domaines stationnaires

En partant d'une structure de type mono-domaine perpendiculaire à très basse température, un premier état de domaines en bandes ordonnés se manifeste à partir d'une certaine température. Cet état est qualifié de type "**smectique**". Les domaines sont stationnaires et peuvent être apparentés à un état solide de type verre [137] ou solide cristallin selon la nature du substrat. Le paramètre d'ordre spatial est alors égal à 1 et ne décroît que faiblement avec la distance entre les domaines (algébriquement). Notons que dans notre cas, nous possédons un système isotrope dans le plan. De ce fait, aucune orientation particulière n'est attendue de la part des bandes, d'où l'observation de domaines plutôt organisés en structure de type labyrinthe (cf figure 5.1 au chapitre 5).

Czech et Villain [34] font l'approximation qu'excepté pour des valeurs de températures ou de forces d'interaction d'échange très faible, cette structure de type labyrinthe peut être considérée comme un "*solide flottant*", pour lequel la structure en domaines ne serait ni fonction de la structure cristalline de la sous-couche, ni influencée par les défauts sous-jacents [138].

### G.2 Phase liquide fluctuante

En augmentant la température, nous atteignons la température pour laquelle la transition de réorientation de spin débute ( $T_S$  [99],  $T_P$  [136] ou  $T_A$  [137]). A partir de cette température et jus-

qu'à celle marquant la fin de la réorientation, marquée par le passage à une aimantation d'orientation dominante planaire, le système en bandes va se modifier. De plus en plus de zones vont être sujettes aux fluctuations spatiales des domaines en augmentant la température. D'un système considéré comme un cristal solide (ou verre), nous passons vers un système plutôt assimilé à un **état liquide**, dont le paramètre d'ordre devient nul. Ce paramètre chute alors de manière exponentielle avec la distance, ceci dû à une forte chute de l'anisotropie uniaxiale dans cette configuration. La phase obtenue est alors qualifiée de désordonnée. Notre système ne présentant pas d'orientation préférentielle comme mentionné précédemment, l'indice visuel qui nous permettra de déceler pour quelles positions nous nous trouvons dans cette zone de type liquide sera la multiplication de ces zones de fluctuations, marquée par la perte progressive du contraste Kerr.

C'est là que deux scénarios sont possibles sur la manière dont s'opère la transition pour cette gamme de température. Abanov [136] décrit les deux cas :

- Transition avec état intermédiaire nématique : Il mentionne l'existence d'un état "intermédiaire", qu'il qualifie de **nématique**, pour lequel l'anisotropie uniaxiale serait encore forte, et la valeur du paramètre d'ordre évoluerait de manière exponentielle avec la distance mais en gardant une valeur non nulle (entre  $\theta, \delta$  et  $\theta, \delta$ ). Abanov décrit cet état comme celui où les défauts de type dislocations non appariées proliféreraient. Il écrit que l'on perd ainsi le paramètre d'ordre positionnel, mais qu'un certain paramètre d'ordre orientationnel est conservé dans ce cas. En effet, la structure de domaines en bandes continue de favoriser cette alternance haut-bas des domaines à longue portée. Il nomme donc cet état structure nématique de type Ising (deux orientations préférées).

Note : La transition alors opérée entre cet état et l'état smectique à plus basse températures est une transition de type Kosterlitz-Thouless ( $KT$ ), qui se base justement sur la prolifération de défauts non appariés.

Cependant, cet état intermédiaire n'est stabilisé que dans peu de cas et pas facilement observable. Cette étape a même été qualifiée de transition "fantôme" entre la phase déclarée solide (smectique) et la phase liquide désordonnée [139]. Dans notre cas, la transition s'opérant sur une gamme très restreinte en position, nous ne pourrions conclure avec certitude sur l'existence d'une zone intermédiaire de ce type.

S'opère alors ensuite une transition (pour une température  $T_O$  [136]) vers la phase qualifiée de "**liquide**" présentant la même viscosité que l'état "intermédiaire". Ceci amorcé par une chute de l'anisotropie uniaxiale et donc induisant une plus forte mobilité des parois de domaines (tilt), ce qui conduit à un état plus désordonné de la structure (paramètre d'ordre s'annule alors totalement). La perte de ce paramètre d'ordre signifie que la symétrie entre les orientations verticales et horizontales de l'échantillon est maintenant à prendre en compte [140]. L'hypothèse de solide flottant n'est donc plus applicable dans cette zone "liquide" à trop fortes fluctuations. La sous-couche (couche inférieure à la couche magnétique) va donc avoir une grande importance pour la description des étapes de cette transition. On parle par exemple de **phase liquide tétragonale** lorsque la sous-couche possède une structure cubique [140].

- Transition sans état intermédiaire nématique : Bergeard et Portmann [99, 137], quant à eux, ne choisissent pas de faire la différence entre deux états distincts (ils ne mentionnent pas l'existence d'un état "intermédiaire"), mais se concentrent plutôt sur l'évolution des fluctuations spatiales des domaines. Ces fluctuations sont de plus en plus marquées lorsque l'on augmente la température. Bergeard en déduit même une température dite de fusion,

$T_m$ , marquant une transition entre une structure en domaines perpendiculaires et fluctuants, et une phase fluctuante isotrope où la détection de domaines n'est plus possible par les techniques d'imagerie qu'il utilise (résolution en temps pour la prise d'image trop faible). De son côté, Portmann décrit le phénomène observé en utilisant un paramètre de dynamique des stripes qui les rend plus ou moins mobiles selon la température considérée. Il décrit cette zone de transition comme une zone où l'on serait témoins d'un gel progressif du degré de dynamique des domaines lorsque la température diminue. Il qualifie cette mobilité variable des domaines de robuste, car il considère que ce phénomène est systématiquement observé (dans les systèmes à épaisseur de ferromagnétique variable, pour les systèmes où  $T_c^0$  est proche de la température ambiante etc...).

### G.3 Phase paramagnétique désordonnée

En augmentant à nouveau la température, cette phase liquide très désordonnée va évoluer vers une phase **paramagnétique** entièrement désordonnée (à  $T_c$  [136] et à  $T_c^0$  [137]). Aucune transition de phase étroite n'a été observée en température comme cela avait été prédit par Abanov. En effet, Portmann assiste à un mélange de zones fluctuantes à forte mobilité de parois et de zone faiblement contrastées (paramagnétiques) pour une même température de mesure (cf figure G.1). Cette transition s'opère donc graduellement et localement.

Le mécanisme amenant à la configuration paramagnétique peut se manifester de plusieurs manières. Il a été observé que l'on peut aussi passer par une phase intermédiaire de type bandes droites (stripes) entre la configuration labyrinthe et celle purement paramagnétique. Cela serait induit à nouveau par une instabilité du front des bandes [138] et très dépendant de la couche sous-jacente.

Il est difficile de définir un ordre pour cette transition de phase du fait de l'intervention d'un facteur dynamique multipliant ces zones de fluctuations. De nombreuses études ont été réalisées pour chercher à étudier les discontinuités établies entre chacune de ces phases, et pour permettre de déduire un ordre de transition, mais nous avons choisi de ne pas les résumer ici par raison de clarté.

### G.4 Réorientation planaire ?

Il a été démontré que la réorientation de spin peut avoir lieu pour une température plus faible que  $T_c$  (soit avant le passage paramagnétique) ( $T_R$  [136] ou  $T_F$  [99]) ou pour une température plus élevée ( $T_{SRT}$  [100]). Une manière de détecter le passage de l'aimantation dans une configuration planaire est d'étudier la largeur des domaines en fonction de la température. En effet, cette période diminue lorsque la température augmente, et la densité des domaines augmente. Won [100] démontre qu'il existe une largeur minimale de domaines, lorsque le processus de *SRT* débute, soit lorsque  $K_{eff} = 0$ . Cette largeur minimal, qu'il note  $L_{min}$  est donc atteinte dans le cas d'une réorientation planaire et ne l'est pas dans le cas d'un passage paramagnétique antérieur à la fin de la réorientation. Cependant, cette largeur tendra alors vers une largeur critique finie,  $L_c$ , plus élevée que  $L_{min}$  lorsque la température augmente [137].

La valeur de  $L_{min}$  est déduite du bilan en énergie réalisé au point de *SRT*, pour lequel l'anisotropie est nulle. Il y a donc uniquement compétition entre les termes d'interaction dipolaire à longue portée et les termes d'échange direct à courte portée en ce point précis. L'équilibre entre

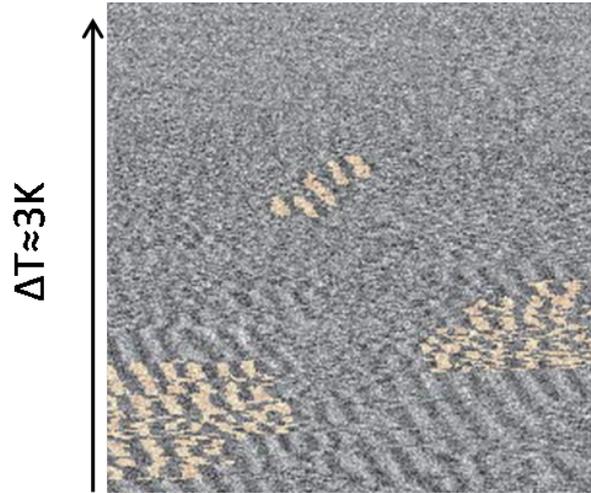


FIGURE G.1: Mise en évidence par méthode d'imagerie *SEMPA* (microscopie électronique à balayage avec analyse en polarisation) de la transition entre l'état de domaines magnétiques en bandes à l'état paramagnétique pour un système perpendiculaire de *Fe/Cu*. Les zones colorées représentent les zones de forte mobilité des domaines. Une ligne horizontale est isotherme [137].

le coût en énergie pour la création de la paroi de domaine (lié à l'échange) et le gain obtenu grâce à la structure de domaines à orientation alternée (lié au terme dipolaire) permet de dire que  $L_{min}$  varie comme le rapport des forces de ces deux interactions :  $L_{min} \propto J \cdot \pi^2 / \Omega_L$  [100], avec  $J$  la constante d'interaction d'échange entre proches voisins et  $\Omega_L$  les forces d'interaction dipolaire à longue portée.

Les termes d'énergie stabilisant les structure de type labyrinthe de domaines ont été mieux décrites au chapitre 1, où nous nous sommes concentrés sur les modèles utiles à la stabilisation de ce type de domaines.

La possibilité d'une réorientation planaire est donc à envisager dans le cas de nos échantillons. Cependant, comme vu au chapitre 5, nos transitions s'opérant sur une gamme de positions très restreinte et non sur une gamme de températures (qui peut alors être contrôlée lors de la mesure), il nous est très difficile de conclure simplement sur les types de transitions observées ou non. Et ce, malgré le travail de caractérisation systématique et précis que nous avons décrit au chapitre 5. Une manière de vérifier que nous sommes témoins d'une transition planaire serait donc de comparer la valeur limite de la largeur de nos domaines avec la valeur calculée de  $L_{min}$  pour notre système.

## G.5 Facteurs de structure et bilan

En conclusion, nous avons résumé les différentes phases déjà observées dans le cas d'une transition de type perpendiculaire/planaire/paramagnétique ou bien perpendiculaire/paramagnétique. Une manière d'avoir une idée plus précise de l'évolution de la structure en domaines le long de notre couche est de réaliser la transformée de l'image des domaines dans l'espace réciproque. Nous aurons ainsi accès aux orientations privilégiées et à des informations sur la période des domaines considérés. L'extraction de la période de nos domaines a été décrite au chapitre 5, mais nous avons représenté en figure G.2 un bilan des transitions décrites précédemment (en utilisant les notations de températures utilisées par Abanov [136]) en y incluant les différents facteurs de structures (coupe des images dans l'espace réciproque) auxquels on peut s'attendre [140]. Nous

avons aussi schématisé en figure G.3 la disposition des molécules dans le cas de structures de type smectique et nématique.

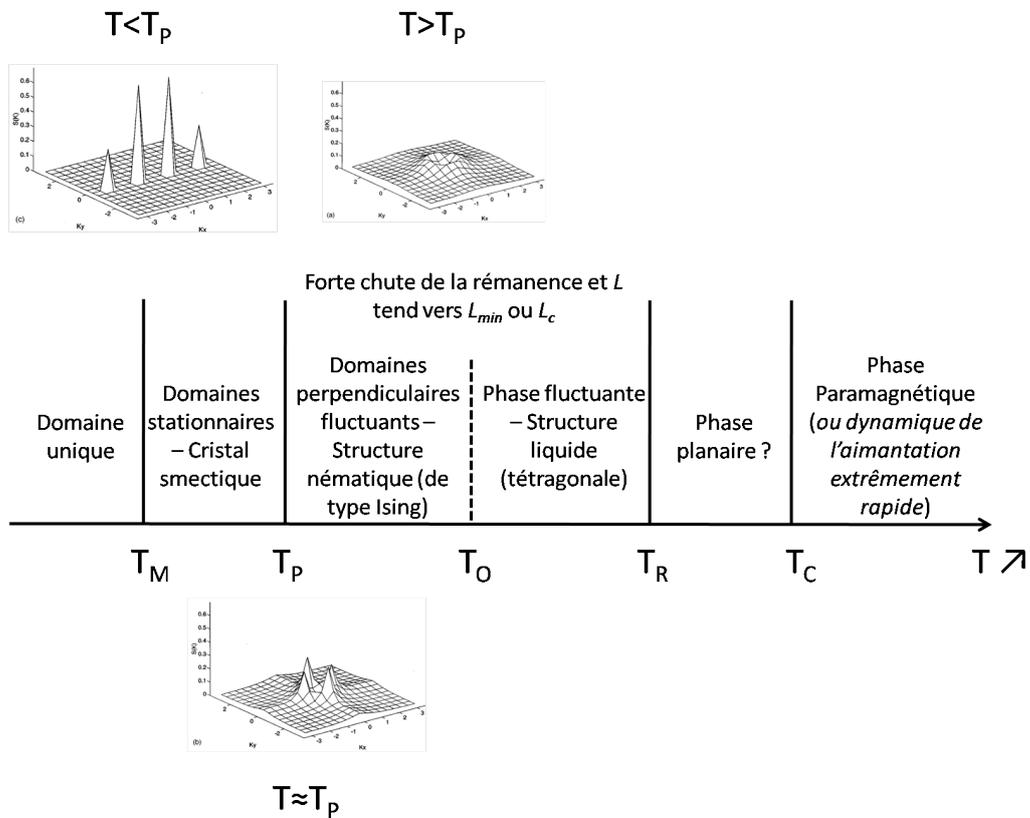


FIGURE G.2: Transition de réorientation de spin du modèle décrit par Abanov [136]. Description des différentes phases envisagées et leur analogie avec les phases de cristaux liquides. Facteur de structure associés pour une sous-couche de maille cubique [140].

Le facteur de structure que l'on peut extraire de nos images représente un anneau diffus (similaire à celui représenté en figure G.2 pour le cas  $T > T_P$  [140], cf figure G.4). Le fait qu'il ne mette pas en avant d'orientation préférentielle pour notre structure en labyrinthe signifie que la configuration en domaines n'est aucunement influencée par la géométrie de la couche (paramètre de maille). Dans ce cas là, le film est considéré se comportant comme un "solide flottant" [34] et cela vient bien vérifier l'hypothèse faite précédemment.

Ce travail bibliographique nous a donc permis de pouvoir comparer ce diagramme de transition de phases obtenu en températures variables, avec ce que nous observons au sein de nos échantillons, pour lesquels le degré d'oxydation de l'interface supérieure est variable.

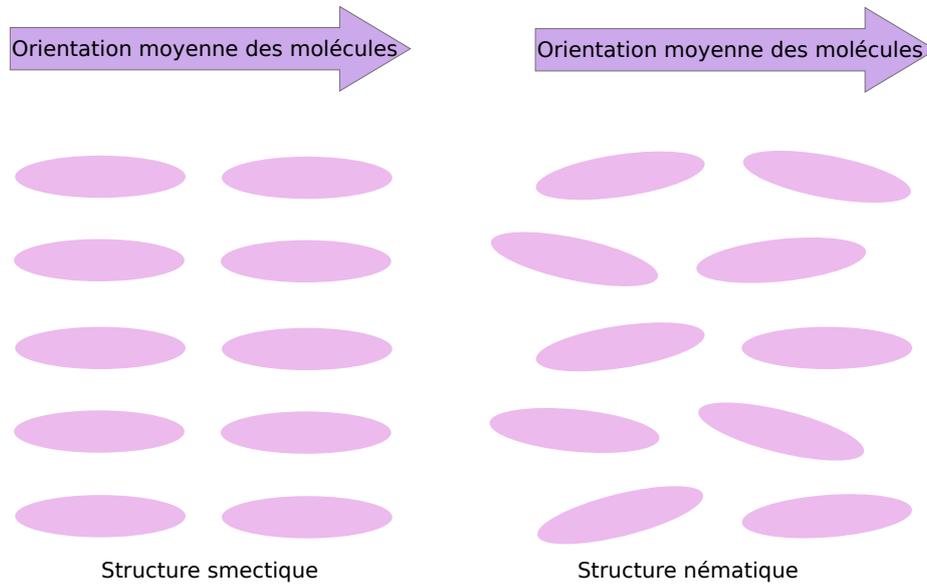


FIGURE G.3: Exemple d'organisation des molécules pour des structures de type smectique (solide ou cristallin) et nématique (entre solide et liquide).

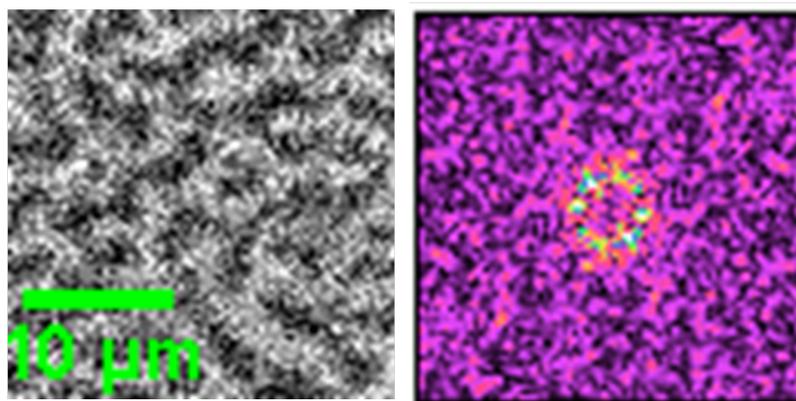


FIGURE G.4: Exemple de transformée de Fourier (2D) obtenue sur une image carrée de notre structure en labyrinthe.

# Annexe H

## Possibilité de réorientation planaire ?

La question de la réorientation planaire a été développée en section 5.1.2 au chapitre 5 et en annexe G. Une méthode pour détecter cette réorientation a été évoquée et consistait à calculer la largeur minimale envisagée pour les domaines et de vérifier si cette dimension était atteinte. Cependant, nous n'avons pas pu réaliser ce calcul dans notre cas car  $L_{min}$  est directement proportionnelle à la valeur de l'interaction d'échange, qui reste un paramètre non connu précisément dans le cas de notre couche ultra-fine.

La possibilité d'une réorientation planaire<sup>1</sup> le long de notre échantillon a été évoquée au chapitre 5 lors du bilan des mesures, entre autres, de champ de saturation perpendiculaire en fonction de la position le long de la zone ultra-fine (en section 5.2.2), ou encore la mesure d'anisotropie effective qui a montré un signal  $K_{eff} \cdot t$  chutant vers les zones de plus forte oxydation (section 5.2.3).

Nous avons réalisé le même type d'étude que Bergeard [92] avait réalisée en température pour son système (mentionnée en section 5.2.4 et en annexe G), afin d'expliquer la perte de son contraste Kerr pour une température dite de fusion  $T_m$ , inférieure à celle de Curie.

Nous avons donc exprimé le rapport  $M_r/M_s$  pour chacune des positions mesurées en *VSM – SQUID*, avec un champ perpendiculaire, et nous avons pu observer une constante diminution de ce rapport pour les positions où le *Co* est considéré comme épais (entre 30 et 48mm, cf fig. H.1 a)). Ce rapport était même constant et quasiment égal à 1 pour les positions comprises entre 40 et 48mm, positions pour lesquelles nous avons observé un signal Kerr constant au chapitre 4 (cf figure 4.8), ainsi qu'un signal de tension de Hall constant (cf annexe C). Ceci indique que nous ne sommes pas en présence de nanodomains planaires pour ces positions, l'aimantation est pleinement perpendiculaire, et cette zone correspond aussi à celle où nous avons le maximum de coercivité (cf chapitre 4).

De Bell' déclare qu'expérimentalement, la température définissant la transition de réorientation de spin est la température pour laquelle une composante planaire de l'aimantation se distingue [140]. Dans notre cas, cette composante se distingue dès les positions inférieures à 40mm. Cependant pour les positions comprises entre 30 et 40mm, le rapport  $M_r/M_s$  reste assez fort et proche de 1. L'oxydation progressive de l'interface *Co/Al* viendrait-elle favoriser l'expression de nanodomains planaires au sein de la structure<sup>2</sup> ?

---

1. Ou bien de l'expression d'une composante planaire de l'aimantation, sans pour autant atteindre la réorientation

2. Le rapport étant proche de 0,87 pour ces positions, cela rejoint le rapport qu'avait Bergeard pour ses températures de mesure les plus faibles [92]

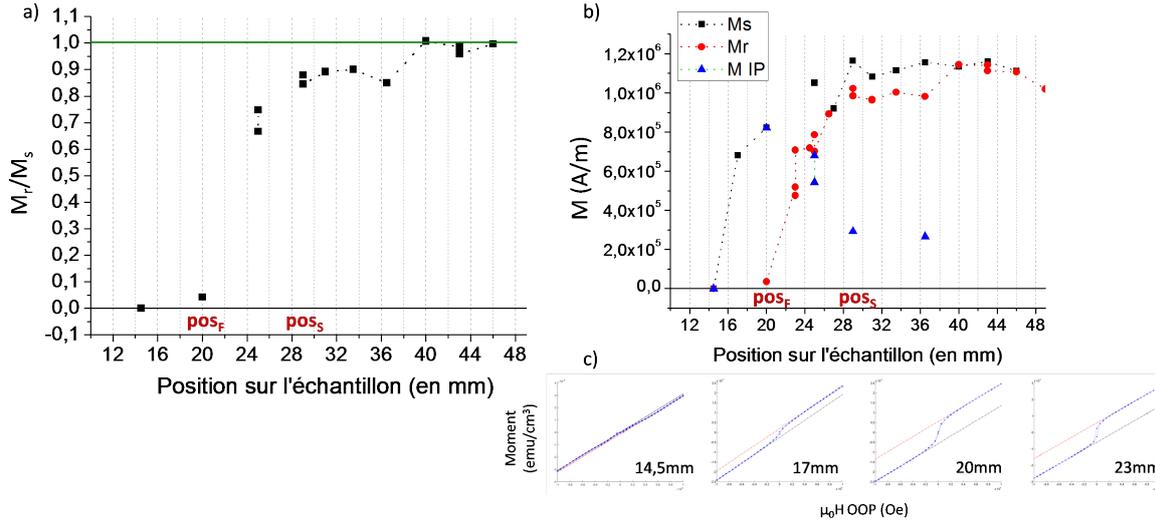


FIGURE H.1: a) Rapport  $M_r/M_s$  en fonction de la position sur l'échantillon. Repérage des positions qui pourraient être considérées comme celle de début  $pos_S$  et de fin de réorientation  $pos_F$ . b) Tracé des composantes  $M_s$ ,  $M_r$  perpendiculaire et expression de la composante  $M_{IP}$  résultante. A nouveau, mise en évidence des positions repérant le procédé de transition de réorientation. c) Cycles  $VSM - SQUID$  correspondants aux positions proche de la transition envisagée.

Nous pouvons donc déterminer deux étapes dans l'expression d'une composante planaire de l'aimantation :

- Pour une interface d'oxydation optimale, la couche est totalement perpendiculaire et la composante planaire de l'aimantation est nulle.
- Ensuite, l'oxydation de l'interface s'intensifie et le rapport  $M_r/M_s$  chute à  $0,87$  pour des positions entre  $29$  et  $36mm$ . Ce rapport est alors globalement constant. Nous avons vu au chapitre 4 que le signal  $M_s.t$  était constant pour ces positions. L'oxydation de l'interface a donc progressé mais l'épaisseur de  $Co$  est intacte. Nous pourrions décrire cette zone comme présentant l'expression de nanodomains planaires faisant chuter le rapport  $M_r/M_s$  et permettant d'exprimer une faible composante planaire de l'aimantation. Cette zone n'est pas considérée comme une zone de réorientation car ce rapport reste fort et constant et est en accord avec les observations de Bergéard au cours de ses travaux de thèse [92].
- La réorientation (ou bien l'expression d'une composante  $M_x$  plus importante) peut donc être envisagée pour les positions où l'épaisseur de  $Co$  commence à diminuer et peut être repérée pour des positions entre  $29mm$  et  $20mm$  où ce rapport chute à  $0$ .

Le tracé de ce rapport permet donc de définir des positions de début ( $29mm$ ) et de fin de réorientation ( $20mm$ ) que nous pourrions imaginer le cas échéant, comme l'avait été fait en température par Bergéard [92].

La composante planaire de l'aimantation notée  $M_{IP}$  en figure H.1 b) a été déduite en exprimant la valeur de l'angle de réorientation  $\theta$  telle que :  $\cos \theta = M_r/0,87M_s$ , qui est représentée en figure H.2, puis de déduire  $M_{IP} = M_s \sin \theta$ . Cet angle varie de  $0^\circ$  lorsque  $M_r/M_s = 0,87$  jusqu'à  $90^\circ$  lorsque l'on perd le contraste Kerr et que  $M_r$  s'annule. Nous avons fait apparaître

sur chacune des figures les positions qui pourraient marquer le début  $pos_S$  et la fin  $pos_F$  de la réorientation envisagée.

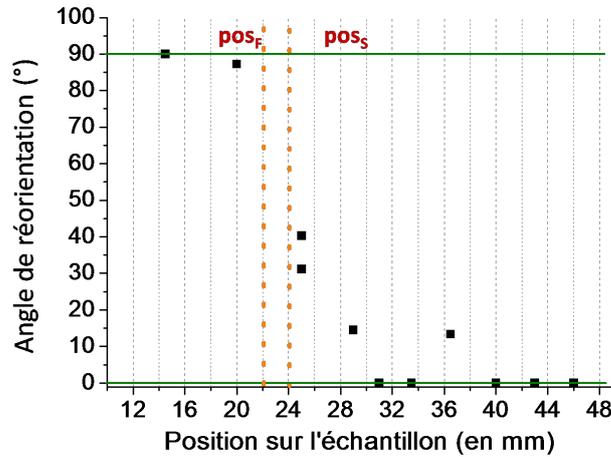


FIGURE H.2: Angle de réorientation  $\theta$  en fonction de la position sur l'échantillon. A nouveau, mise en évidence des positions repérant le procédé de transition de réorientation

En raisonnant comme tel, nous pourrions imaginer que notre structure est l'objet d'une réorientation de spin avant sa transition vers un état paramagnétique. Si l'on utilise la même définition que Bergeard dans sa thèse, décrivant la  $T_c$  comme la température à laquelle s'annule le signal d'aimantation obtenu à fort champ<sup>3</sup>, nous pourrions imaginer que notre échantillon se trouve être ferromagnétique et d'axe facile perpendiculaire de 48 à 20mm, mais qu'il présenterait une composante planaire de l'aimantation qui gagne en importance entre 29 et 20mm, et que la transition vers l'état paramagnétique serait observable pour des positions proches de 15mm. Nous pourrions donc avoir l'existence d'une phase planaire dans notre système pour des positions comprises entre 20 et 15mm.

Il est cependant très difficile de conclure sur cette supposition car les cycles *VSM – SQUID* réalisés en champ planaire n'ont pas donné de résultats probants du fait de la très faible valeurs de nos signaux et d'une grande sensibilité au système de montage. Nous avons dû nous confronter à des difficultés dans le processus de centrage de l'échantillon au sein du système de mesure. Et ce malgré des tentatives de mesures sur différents systèmes en tentant de n'utiliser qu'une quantité minimale d'objet pour la fixation de l'échantillon. Nous pouvions tout de même remarquer que la saturation du signal semblait être atteinte pour des champs plus faibles dans l'orientation perpendiculaire (cf fig. H.3 et H.4), ce qui viendrait réfuter l'hypothèse d'une transition de réorientation.

3.  $T_c$  exprimée telle que au chapitre 5, cf figure 5.9

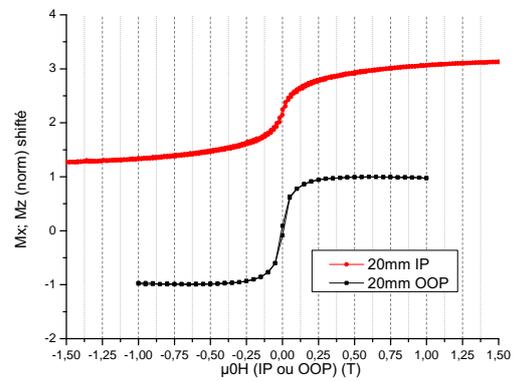
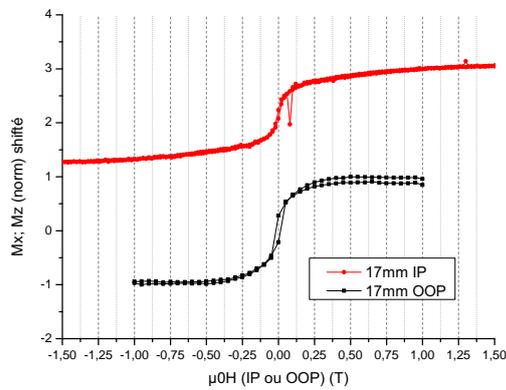


FIGURE H.3:

Gauche : Cycles *VSM – SQUID* normalisés réalisés en champs planaire et perpendiculaire à la surface de l'échantillon - position 17mm.

Droite : Cycles *VSM – SQUID* normalisés réalisés en champs planaire et perpendiculaire à la surface de l'échantillon - position 20mm.

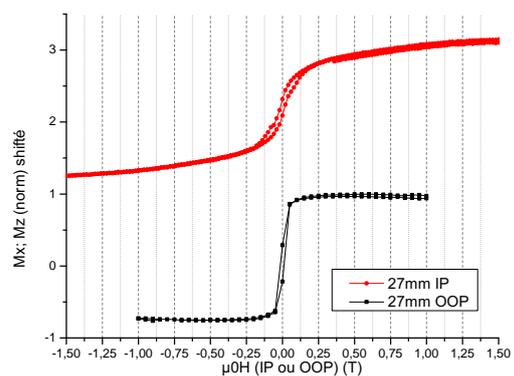
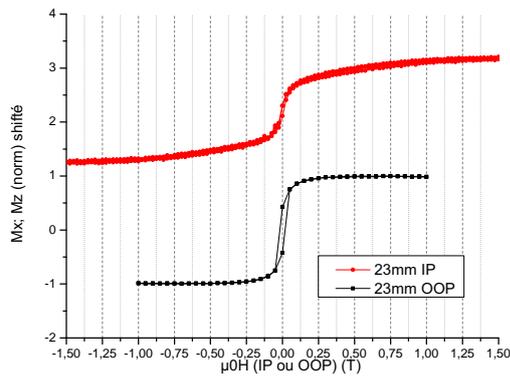


FIGURE H.4:

Gauche : Cycles *VSM – SQUID* normalisés réalisés en champs planaire et perpendiculaire à la surface de l'échantillon - position 23mm.

Droite : Cycles *VSM – SQUID* normalisés réalisés en champs planaire et perpendiculaire à la surface de l'échantillon - position 27mm.

# Annexe I

## Cycles en Kerr polaire avec champ magnétique perpendiculaire sur l'électrode *i* du chapitre 5

Par mesure de clarté, au cours chapitre 5<sup>1</sup>, nous avons choisi de représenter les cycles en Kerr polaire réalisés avec un champ magnétique appliqué perpendiculairement à la surface pour une électrode connectée proche du front de la zone de désaimantation (électrode *ii* en fig. 5.15). Ceci de manière à pouvoir observer le fort effet de l'application d'un champ électrique sur la coercivité, et à pouvoir mettre en évidence les similitudes avec un décalage en position le long de l'échantillon.

Cependant, l'étude de l'impact du champ électrique sur tous les autres paramètres, ainsi que la déduction d'un contrôle du facteur  $D$  par champ électrique a été réalisé sur une électrode plus éloignée du front de cette zone (électrode *i* en fig. 5.15). Nous représentons donc ici (cf fig. I.1) les cycles obtenus pour cette électrode et qui ont contribué à dresser le bilan des variations des propriétés représentées en figure 5.16 au chapitre 5. Nous y faisons apparaître la fenêtre de sélection où ont été réalisées les mesures de cycles Kerr polaire en champs magnétiques appliqués perpendiculairement et parallèlement à la surface. Dans cette zone, nous mettons surtout en évidence la forte chute du signal Kerr ( $\equiv M_s$ ) avec l'application du champ électrique négatif sur la structure. L'arrondissement des cycles est très remarquable. Nous remarquons bien que la zone désaimantée obtenue pour des champs entre 6 et 15V concerne des valeurs de champs coercitifs extrêmement faibles, voire nuls (pour 6 et 9V). Nous verrons dans les annexes suivantes comment nous avons pu regrouper les résultats déduits pour chacune des électrodes présentées (*i* et *ii*) et comment nous avons pu comparer ces signaux au scan réalisé en position le long de l'échantillon.

---

1. Section5.3.2.2

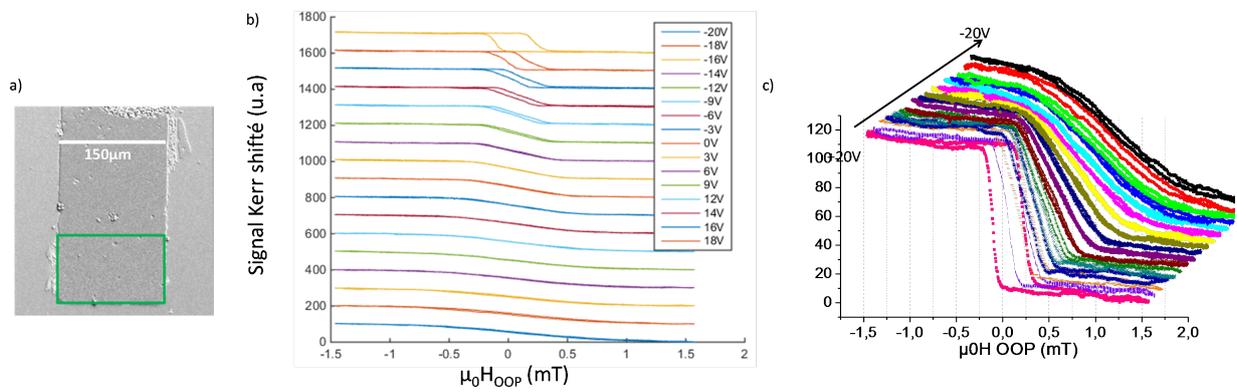


FIGURE I.1: a) Électrode et position sur laquelle la mesure a été réalisée (électrode  $i$  en fig. 5.15).  
 b) Cycles  $M_z(H_{OOP})$  non normalisés, en Kerr polaire, pour un gradient total de tension de 40V.  
 Pour chacun des cycles, le signal Kerr est décalé en ordonnée afin de faciliter la lecture.  
 c) Cycles équivalents présentés en cascade.

# Annexe J

## Loi générale de calcul de propagation des erreurs de mesure

Nous cherchons à exprimer les valeurs d'erreurs attendues pour  $\sigma_\omega$  et pour  $D$ . Ces valeurs étant déduites indirectement de nos mesures expérimentales, elles sont sources de pourcentage d'erreur assez important. Nous pouvons exprimer :

$$\Delta\sigma_\omega(J/m^2) = \sqrt{\left(\frac{\delta\sigma_\omega}{\delta t} \cdot \Delta t\right)^2 + \left(\frac{\delta\sigma_\omega}{\delta M_s} \cdot \Delta M_s\right)^2 + \left(\frac{\delta\sigma_\omega}{\delta L} \cdot \Delta L\right)^2 + \left(\frac{\delta\sigma_\omega}{\delta H_a} \cdot \Delta H_a\right)^2}, \quad (J.1)$$

$$\Delta D(J/m^2) = \sqrt{\left(\frac{\delta D}{\delta K_{eff}} \cdot \Delta K_{eff}\right)^2 + \left(\frac{\delta D}{\delta \sigma_\omega} \cdot \Delta \sigma_\omega\right)^2}. \quad (J.2)$$

Nous ne considérerons pas d'erreur  $\Delta A_{ex}$  pour le calcul de  $\Delta D$ , car nous considérerons cette valeur comme non mesurée.

Nous devons d'abord exprimer l'erreur absolue  $\Delta L$  intervenant dans la méthode d'extraction de la taille des domaines.

### J.1 Déduction de la valeur de l'erreur absolue : $\Delta L$

La mesure de la période des domaines  $2L$  a été réalisée par une technique de transformée de Fourier 1D. Les images étaient divisées en fenêtre de 20 pixels en hauteur, et une transformée de chacune de ces 20 lignes (ligne de  $1px \times$  largeur de l'image) était réalisée. Les valeurs de périodes obtenues étaient ensuite moyennées et nous pouvions ensuite exprimer une valeur de taille de domaines  $L$  pour une fenêtre de largeur  $20 \times 0,3226 \mu m \approx 6,45 \mu m$ .

En nommant  $\delta k$  le plus petit intervalle obtenu dans l'espace de Fourier de chacune des lignes de l'image, nous pouvons donc écrire :  $\delta k = \frac{1}{N \cdot \Delta l}$ , avec  $N \cdot \Delta l$  la longueur de la ligne dans l'espace réel.  $N$  est le nombre de pixels le long d'une ligne (largeur) et  $\Delta l$  représente la taille d'un pixel dans l'espace réel ( $0,3226 \mu m$ ).  $N$  n'était pas fixe et variait pour chacune des images traitée (mesures à différentes tensions).

Ensuite, la période  $2L$  est déduite de l'inverse de  $k_0$ , qui correspond au point pour lequel le maximum du profil dans l'espace de Fourier est atteint (donc au rayon de l'anneau lumineux représenté en annexe G en figure G.4). Ce maximum est déduit avec une erreur  $k_0 \pm \delta k$  dans l'espace de Fourier. On peut donc déduire un encadrement pour la période  $2L$  dans l'espace

réel. La période est encadrée par un pallier supérieur :  $2L_{up} = \frac{1}{k_0 - \delta k}$ , ainsi que par un pallier inférieur :  $2L_{dw} = \frac{1}{k_0 + \delta k}$ . On peut donc exprimer directement l'erreur obtenue sur la période  $2L$  :

$$\Delta 2L = 2L_{up} - 2L_{dw} = \frac{2\delta k}{k_0^2 - \delta k^2} \quad (\text{J.3})$$

En considérant  $\delta k^2$  très faible devant  $k_0^2$ , on obtient :  $\Delta 2L \approx \frac{2\delta k}{k_0^2} = (2L)^2 \times 2\delta k$ . Étant intéressé par l'erreur sur la largeur  $\Delta L$ , nous pouvons écrire :  $\Delta(2L)/(2L) = \Delta L/L$ , donc :  $\Delta L = 4L^2\delta k$ .

Nous déduisons donc  $\Delta L/L$  pour les mesures à différentes tensions, et nous pouvons conclure que la taille des domaines est déduite assez précisément avec une erreur relative de seulement 3 – 4, 35% pour la gamme de tension étudiée (6 – 12V, cf chapitre 5, section 5.3).

## J.2 Dédution de la valeur de l'erreur absolue : $\Delta\sigma_\omega$

Nous pouvons à présent déduire l'erreur sur  $\sigma_\omega$ .

- $\Delta H_a/H_a$  a été estimé égale à 5 – 6%, selon la calibration obtenue pour le champ planaire, mais aussi selon la précision du modèle d'ajustement de type Stoner-Wholfart. Cette erreur a été estimée suite aux nombreuses mesures d'anisotropie réalisées des jours différents (calibration différente) pour des zones de l'échantillon supposées équivalentes.
- Nous prenons  $\Delta t/t = 8\%$ , en fonction des conditions de déposition de la tricouche par sputtering. Le gradient doit être inchangé, mais ces conditions peuvent jouer sur la valeur d'offset demandée (0, 6nm  $\approx$  0, 55 – 0, 65nm).
- Nous pouvons donc définir l'erreur attendue pour  $M_s$ . Nous mesurons à de nombreuses reprises au *VSM – SQUID* le signal  $M_s \cdot t$  pour des positions équivalentes sur l'échantillon. Nous avons donc pu estimer une erreur due à la faiblesse du signal d'environ  $\approx 7\%$  pour cette valeur. Ce qui donne une erreur pour la valeur de  $M_s$  de :  $\Delta M_s/M_s = \Delta(M_s \cdot t)/(M_s \cdot t) + \Delta t/t = 15\%$ .

Nous pouvons ensuite calculer les dérivées partielles entrant dans l'expression (J.1) :

$$\delta\sigma_\omega/\delta t = \sigma_\omega/t - \mu_0 M_s^2/\pi \quad (\text{J.4})$$

$$\delta\sigma_\omega/\delta M_s = 2\sigma_\omega/M_s + \frac{\mu_0 M_s^2 t \cdot H_a(0, 5 - \ln(2))}{\pi \cdot (M_s + H_a)^2} \quad (\text{J.5})$$

$$\delta\sigma_\omega/\delta L = \frac{\mu_0 M_s^2 t \cdot L}{\pi} \quad (\text{J.6})$$

$$\delta\sigma_\omega/\delta H_a = \frac{\mu_0 M_s^3 t \cdot (0, 5 - \ln(2))}{\pi \cdot (M_s + H_a)^2} \quad (\text{J.7})$$

Puis, grâce à ces relations nous avons pu déduire une erreur de mesure :  $\Delta\sigma_\omega/\sigma_\omega = 30, 7\%$  (cf fig. 5.16 au chapitre 5). Cette erreur est importante du fait du procédé d'extraction indirect pour  $\sigma_\omega$ . Cependant, malgré cette forte erreur, et comme mentionné au chapitre 5, l'évolution de la structure en domaines confirme bien une certaine évolution de la valeur de l'énergie de parois. La tendance obtenue (chute de  $\sigma_\omega$  entre 12 et 6V) peut donc être envisagée.

### J.3 Dédution de la valeur de l'erreur absolue : $\Delta D$

De manière à extraire l'erreur absolue pour le facteur  $DMI$ ,  $D$  (J.2), nous devons déduire l'erreur de mesure sur  $K_{eff}$ . A nouveau cette erreur sera importante car  $K_{eff}$  est déduite indirectement des mesures du champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a$ .

En écrivant  $\mu_0 H_a \cdot M_s / 2 = K_{eff}$ , nous pouvons déduire :  $\Delta K_{eff} / K_{eff} = \Delta(\mu_0 H_a) / (\mu_0 H_a) + \Delta M_s / M_s = \Delta H_a / H_a + \Delta M_s / M_s \approx 5\% + 15\% = 20\%$ . Comme mentionné au début de cette annexe, n'ayant pas de mesure directe de la valeur de  $A_{ex}$ , nous ne pouvons estimer correctement la valeur de son erreur, nous la considérerons donc nulle.

Nous pouvons donc exprimer les dérivées partielles utiles rentrant dans l'expression (J.2) :

$$\delta D / \delta K_{eff} = 2 / \pi \cdot \sqrt{\frac{A_{ex}}{K_{eff}}} \quad (J.8)$$

$$\delta D / \delta \sigma_\omega = -1 / \pi \quad (J.9)$$

Nous remarquons que l'erreur calculée pour le facteur  $D$  est liée à la valeur choisie pour  $A_{ex}$ . Nous pouvons donc déduire différente gamme d'erreurs pour  $D$  selon cette valeur. On obtient :  $\Delta D / D \approx 24,5 - 26\%$  pour les valeurs des facteurs  $D(6 \text{ à } 12V)$  déduits en prenant une valeur d'échange proche de  $2,5 pJ/m$ , et une erreur plus faible a été déduite pour une valeur de  $A_{ex}$  plus importante ( $\Delta D / D \approx 13,1 - 13,4\%$  pour une valeur d'échange proche de  $16 pJ/m$ ).

En conclusion les erreurs des valeurs déduites indirectement pour  $\sigma_\omega$  et pour  $D$  sont assez importantes, cependant une évolution est visible pour la valeur de  $\sigma_\omega$  sous champ électrique car cela se confirme avec la modification visible de la structure en domaines. Nous pourrions donc simplifier ce calcul d'erreur en remarquant que pour des mesures réalisées le même jour sur une même zone de l'échantillon, l'erreur sur l'épaisseur  $\Delta t / t$  peut être considérée comme nulle car elle sera la même pour toutes les valeurs de tensions. Cette erreur sur  $t$  viendra donc plus jouer sur l'offset des valeurs de  $\sigma_\omega$  que sur la variation de cette dernière. De plus, nous pouvons aussi imaginer que pour des mesures sur la même zone (décrites au chapitre 5), l'erreur due à la calibration sur la valeur du champ d'anisotropie est, là encore, la même pour toutes les tensions. Cette erreur de mesure ne viendra donc pas changer la variation des valeurs extraites, mais à nouveau plutôt leur valeur d'offset.



# Annexe K

## Comparaison directe des mesures en position et en champ électrique

Nous représentons ici (cf fig. K.1) les valeurs extraites des cycles Kerr perpendiculaires pour deux électrodes différentes. Nous avons groupé les résultats en faisant la correspondance entre les valeurs de coercivité. L'électrode *i*, mentionnée en légende de la figure K.1 est celle dont nous avons fait l'étude poussée au chapitre 5 et dont nous avons donné le bilan de la variation des valeurs en champ électrique en figure 5.16 (cf position en fig. 5.15 au chapitre 5). Elle était connectée dans une zone éloignée de  $600\mu m$  du front de la zone désaimantée. Alors que l'électrode *ii*, dont les cycles sont présentés en section 5.3.2.2 du chapitre 5, se trouvait dans une zone très proche du front.

En réalisant la correspondance de ces deux séries de mesures, nous sommes capables de retrouver les variations des propriétés magnétiques déduites en position le long de la zone de désaimantation et représentées en figure 5.5 a) du chapitre 5. Ceci venant confirmer les fortes similitudes déduites au chapitre 5 entre le procédé d'oxydation progressive du *Co* et l'accumulation de charges électriques aux interfaces. Une équivalence entre une tension appliquée de  $30V$  et un décalage en position d'environ  $500\mu m$  peut être déduite de cette représentation et a été mentionnée au chapitre 5.

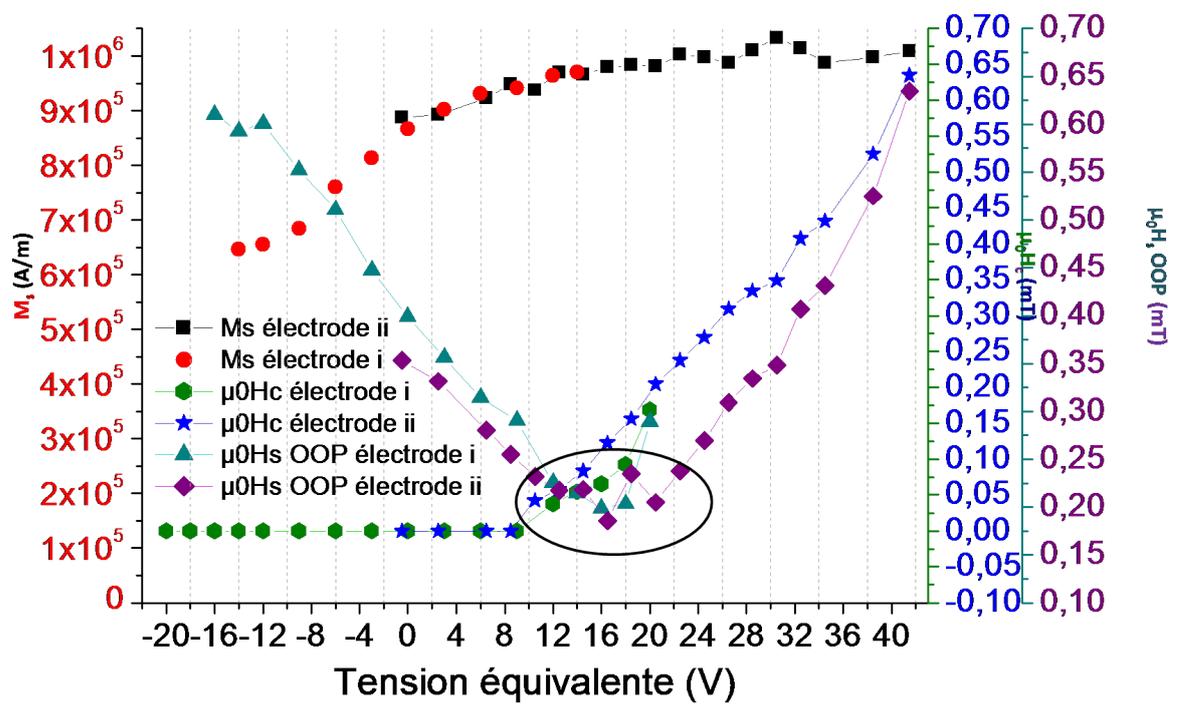


FIGURE K.1: Extraction du signal Kerr ( $\equiv M_s$ ), de la coercivité (en  $mT$ ) et du champ de saturation perpendiculaire (en  $mT$ ) pour deux électrodes connectées à des positions différentes le long de la zone désaimantée. Les équivalences pour les tensions appliquées ont été faites en faisant correspondre les valeurs de coercivité. Électrode  $i$  correspond à celle dont le bilan est présenté en figure 5.16 au chapitre 5, ses cycles sont donnés en annexe I et électrode  $ii$  est celle dont les cycles sont donnés au chapitre 5 en section 5.3.2.2. Cette électrode se trouvait plus proche du front de la zone désaimantée que la  $i$  (cf fig. 5.15 au chapitre 5).

# Bibliographie

- [1] B. Dieny and M. Chshiev. Perpendicular magnetic anisotropy at transition metal/oxide interfaces and applications. *Rev. Mod. Phys.*, 89 :025008, Jun 2017.
- [2] Lukas Leander Gerhard. *Magnetoelectric coupling at metal surfaces*. Experimental Condensed Matter Physics / Karlsruher Institut für Technologie, Physikalisches Institut ; 7, 2013.
- [3] M. Cyrot, M. Décorps, B. Diény, O. Geoffroy, D. Gignoux, and P. Lethuillier P. Molho J-C. Peuzin J. Pierre J-L. Porteseil P. Rochette M-F. Rossignol M. Schlenker C. Segebarth Y. Souche E. Trémolet de Lacheisserie J-P. Yonnet C. Lacroix, J. Laforest. *Magnétisme - I - Fondements*. EDP Sciences, 2000.
- [4] F. Ferraro. *Magnetic anisotropies and exchange bias in ultrathin cobalt layers for the tunnel anisotropic magnetoresistance*. PhD thesis, 2015, Institut Néel.
- [5] R. Lo Conte. *Magnetic nanostructures with structural inversion asymmetry*. PhD thesis, 2015.
- [6] I. Dzyaloshinsky. A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 4(4) :241 – 255, 1958.
- [7] Tôru Moriya. Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism. *Phys. Rev.*, 120 :91–98, Oct 1960.
- [8] A. Fert and Peter M. Levy. Role of anisotropic exchange interactions in determining the properties of spin-glasses. *Phys. Rev. Lett.*, 44 :1538–1541, Jun 1980.
- [9] Hongxin Yang, André Thiaville, Stanislas Rohart, Albert Fert, and Mairbek Chshiev. Anatomy of dzyaloshinskii-moriya interaction at Co/Pt interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 115 :267210, Dec 2015.
- [10] A. Crépieux and C. Lacroix. Dzyaloshinsky–moriya interactions induced by symmetry breaking at a surface. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 182(3) :341 – 349, 1998.
- [11] Louis Néel. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d’orientation. *J. Phys. Radium*, 15(4) :225–239, 1954.
- [12] U. Gradmann and J. Müller. Flat ferromagnetic, epitaxial 48Ni/52Fe(111) films of few atomic layers. *physica status solidi (b)*, 27(1) :313–324, 1968.
- [13] P. F. Carcia. Perpendicular magnetic anisotropy in pdco and ptco thin film layered structures. *Journal of Applied Physics*, 63(10) :5066–5073, 1988.
- [14] W. B. Zeper, F. J. A. M. Greidanus, P. F. Carcia, and C. R. Fincher. Perpendicular magnetic anisotropy and magneto optical kerr effect of vapor deposited CoPt layered structures. *Journal of Applied Physics*, 65(12) :4971–4975, 1989.
- [15] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries. Magnetic anisotropy in metallic multilayers. *Reports on Progress in Physics*, 59(11) :1409, 1996.

- [16] S. Monso, B. Rodmacq, S. Auffret, G. Casali, F. Fettar, B. Gilles, B. Dieny, and P. Boyer. Crossover from in-plane to perpendicular anisotropy in Pt/CoFe/AlO<sub>x</sub> sandwiches as a function of Al oxidation : A very accurate control of the oxidation of tunnel barriers. *Applied Physics Letters*, 80(22) :4157–4159, 2002.
- [17] B. Rodmacq, S. Auffret, B. Dieny, S. Monso, and P. Boyer. Crossovers from in-plane to perpendicular anisotropy in magnetic tunnel junctions as a function of the barrier degree of oxidation. *Journal of Applied Physics*, 93(10) :7513–7515, 2003.
- [18] A. Manchon, C. Ducruet, L. Lombard, S. Auffret, B. Rodmacq, B. Dieny, S. Pizzini, J. Vogel, V. Uhlř, M. Hochstrasser, and G. Panaccione. Analysis of oxygen induced anisotropy crossover in Pt/Co/MO<sub>x</sub> trilayers. *Journal of Applied Physics*, 104(4) :043914, 2008.
- [19] H. X. Yang, M. Chshiev, B. Dieny, J. H. Lee, A. Manchon, and K. H. Shin. First-principles investigation of the very large perpendicular magnetic anisotropy at Fe|MgO and Co|MgO interfaces. *Phys. Rev. B*, 84 :054401, Aug 2011.
- [20] E. Stoner and E. Wohlfarth. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 240(826) :599–642, 1948.
- [21] N. A. Saratz. *Inverse Symmetry Breaking in Low-Dimensional Systems*. PhD thesis, 2009, ETH Zurich.
- [22] Charles Kittel. Theory of the Structure of Ferromagnetic Domains in Films and Small Particles. *Phys. Rev.*, 70 :965–971, December 1946.
- [23] Dr. Alex Hubert and Dr. Rudolf Schäfer. *Magnetic Domains*. Springer Berlin Heidelberg, 1998.
- [24] W. Rave, K. Fabian, and A. Hubert. Magnetic states of small cubic particles with uniaxial anisotropy. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 190(3) :332 – 348, 1998.
- [25] M. Fox and R. S. Tebble. The Demagnetizing Energy and Domain Structure of a Uniaxial Single Crystal. *Proceedings of the Physical Society*, 72(5) :765, 1958.
- [26] Zdeněk Málek and Vladimř Kamberský. On the theory of the domain structure of thin films of magnetically uni-axial materials. *Czechoslovakij fiziceskij zurnal*, 8(4) :416–421, 1958.
- [27] Y. Yafet and E. M. Gyorgy. Ferromagnetic strip domains in an atomic monolayer. *Phys. Rev. B*, 38 :9145–9151, 1988.
- [28] A. L. Sukstanskii and K. I. Primak. Domain structure in an ultrathin ferromagnetic film. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 169(1) :31–38, 1997.
- [29] Ivan Lemesh, Felix Buttner, and Geoffrey S. D. Beach. Accurate model of the stripe domain phase of perpendicularly magnetized multilayers. *Phys. Rev. B*, 95 :174423, May 2017.
- [30] C Kooy and U Enz. Experimental and theoretical study of the domain configuration in thin layers of bafe12o. *Philips Research Reports*, 15 :7–29, 1960.
- [31] V. Gehanno, A. Marty, B. Gilles, and Y. Samson. Magnetic domains in epitaxial ordered FePd(001) thin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Phys. Rev. B*, 55 :12552–12555, May 1997.
- [32] Yonko Millev. Bose - Einstein integrals and domain morphology in ultrathin ferromagnetic films with perpendicular magnetization. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 8(20) :3671, 1996.

- [33] H. J. G. Draaisma and W. J. M. de Jonge. Magnetization curves of Pd/Co multilayers with perpendicular anisotropy. *Journal of Applied Physics*, 62(8) :3318–3322, 1987.
- [34] R. Czech and J. Villain. Instability of two-dimensional Ising ferromagnets with dipole interactions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 1(3) :619, 1989.
- [35] B. Kaplan and G. A. Gehring. The domain structure in ultrathin magnetic films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 128(1) :111–116, 1993.
- [36] Stuart S. P. Parkin, Masamitsu Hayashi, and Luc Thomas. Magnetic domain-wall racetrack memory. *Science*, 320(5873) :190–194, 2008.
- [37] A J Schellekens, A van den Brink, J H Franken, H J M Swagten, and B Koopmans. Electric-field control of domain wall motion in perpendicularly magnetized materials. *Nature Communications*, 3 :847, 2012.
- [38] T. Maruyama, Y. Shiota, T. Nozaki, K. Ohta, N. Toda, N. Mizuguchi, A. A. Tulapurkar, T. Shinjo, M. Shiraishi, S. Mizukami, Y. Ando, and Y. Suzuki. Large voltage-induced magnetic anisotropy change in a few atomic layers of iron. *Nature Nanotechnology*, 4 :158, 2009.
- [39] Wei-Gang Wang, Mingen Li, Stephen Hageman, and C. L. Chien. Electric-field-assisted switching in magnetic tunnel junctions. *Nature Materials*, 11 :64, 2012.
- [40] Manish K Niranjana, Chun-Gang Duan, Sitaram S Jaswal, and Evgeny Y Tsymbal. Electric field effect on magnetization at the Fe/MgO(001) interface. *Applied Physics Letters*, 96(22) :222504, 2010.
- [41] M. Endo, S. Kanai, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno. Electric-field effects on thickness dependent magnetic anisotropy of sputtered MgO/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/Ta structures. *Applied Physics Letters*, 96(21) :212503, 2010.
- [42] Kihiro Yamada, Haruka Kakizakai, Kazutoshi Shimamura, Masashi Kawaguchi, Shunsuke Fukami, Nobuyuki Ishiwata, Daichi Chiba, and Teruo Ono. Electric field modulation of magnetic anisotropy in MgO/Co/Pt structure. *Applied Physics Express*, 6(7) :073004, 2013.
- [43] H. Ohno, D. Chiba, F. Matsukura, T. Omiya, E. Abe, T. Dietl, Y. Ohno, and K. Ohtani. Electric-field control of ferromagnetism. 408(6815) :944–946, December 2000.
- [44] D. Chiba, S. Fukami, K. Shimamura, N. Ishiwata, K. Kobayashi, and T. Ono. Electrical control of the ferromagnetic phase transition in cobalt at room temperature. *Nature Materials*, 10 :853, 2011.
- [45] D. Chiba, M. Sawicki, Y. Nishitani, Y. Nakatani, F. Matsukura, and H. Ohno. Magnetization vector manipulation by electric fields. 455(7212) :515–518, September 2008.
- [46] K. Shimamura, D. Chiba, S. Ono, S. Fukami, N. Ishiwata, M. Kawaguchi, K. Kobayashi, and T. Ono. Electrical control of Curie temperature in cobalt using an ionic liquid film. *Applied Physics Letters*, 100(12), 2012.
- [47] S. Fusil, V. Garcia, A. Barthélémy, and M. Bibes. Magnetoelectric devices for spintronics. *Annual Review of Materials Research*, 44(1) :91–116, 2014.
- [48] U. Bauer. *Voltage programmable materials*. PhD thesis, 2015.
- [49] C. Hamelin. *Couple de spin-orbite en vue d'application aux mémoires cache*. PhD thesis, 2016.
- [50] D Sando, A Barthélémy, and M Bibes. Bifeo<sub>3</sub> epitaxial thin films and devices : past, present and future. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 26(47) :473201, 2014.

- [51] Vincent Garcia, Manuel Bibes, and Agnès Barthélémy. Artificial multiferroic heterostructures for an electric control of magnetic properties. *Comptes Rendus Physique*, 16(2) :168 – 181, 2015. Multiferroic materials and heterostructures / Matériaux et hétérostructures multiferroïques.
- [52] Martin Weisheit, Sebastian Fahler, Alain Marty, Yves Souche, Christiane Poinignon, and Dominique Givord. Electric Field-Induced Modification of Magnetism in Thin-Film Ferromagnets. *Science*, 315(5810) :349–351, 2007.
- [53] Yoichi Shiota, Takuto Maruyama, Takayuki Nozaki, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, and Yoshishige Suzuki. Voltage-assisted magnetization switching in ultrathin Fe<sub>80</sub>Co<sub>20</sub> alloy layers. *Applied Physics Express*, 2(6) :063001, 2009.
- [54] C Takahashi, M Ogura, and H Akai. First-principles calculation of the Curie temperature Slater–Pauling curve. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19(36) :365233, 2007.
- [55] J. H. Franken, Y. Yin, A. J. Schellekens, A. van den Brink, H. J. M. Swagten, and B. Koopmans. Voltage-gated pinning in a magnetic domain-wall conduit. *Applied Physics Letters*, 103(10) :102411, 2013.
- [56] A. Bernard-Mantel, L. Herrera-Diez, L. Ranno, S. Pizzini, J. Vogel, D. Givord, S. Auffret, O. Boulle, I. M. Miron, and G. Gaudin. Electric-field control of domain wall nucleation and pinning in a metallic ferromagnet. *Applied Physics Letters*, 102(12) :122406, 2013.
- [57] D Chiba, M Kawaguchi, S Fukami, N Ishiwata, K Shimamura, K Kobayashi, and T Ono. Electric-field control of magnetic domain-wall velocity in ultrathin cobalt with perpendicular magnetization. *Nature Communications*, 3 :888, 2012.
- [58] T. Nozaki, Y. Shiota, M. Shiraishi, T. Shinjo, and Y. Suzuki. Voltage-induced perpendicular magnetic anisotropy change in magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 96(2) :022506, 2010.
- [59] Yoichi Shiota, Takayuki Nozaki, Frederic Bonell, Shinichi Murakami, Teruya Shinjo, and Yoshishige Suzuki. Induction of coherent magnetization switching in a few atomic layers of FeCo using voltage pulses. *Nature Materials*, 11 :39, 2012.
- [60] Evgeny Y. Tsymbal. Spintronics : Electric toggling of magnets. 11(1) :12–13, January 2012.
- [61] P. Khalili Amiri, P. Upadhyaya, J. G. Alzate, and K. L. Wang. Electric-field-induced thermally assisted switching of monodomain magnetic bits. *Journal of Applied Physics*, 113(1) :013912, 2013.
- [62] Chun-Gang Duan, Julian P. Velev, R. F. Sabirianov, Ziqiang Zhu, Junhao Chu, S. S. Jaswal, and E. Y. Tsymbal. Surface magnetoelectric effect in ferromagnetic metal films. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :137201, Sep 2008.
- [63] F. Ibrahim, A. Hallal, B. Dieny, and M. Chshiev. Giant variation of the perpendicular magnetic anisotropy at Fe/MgO interfaces by oxygen migration : a first-principles study, 2016.
- [64] Masahito Tsujikawa and Tatsuki Oda. Finite electric field effects in the large perpendicular magnetic anisotropy surface Pt/Fe/Pt(001) : A first-principles study. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :247203, Jun 2009.
- [65] K Kyuno, R Yamamoto, and S Asano. First-principles calculation of the magnetic anisotropy energies of iron-based metallic multilayers. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 1(2) :133, 1993.

- [66] Kohji Nakamura, Riki Shimabukuro, Yuji Fujiwara, Toru Akiyama, Tomonori Ito, and A. J. Freeman. Giant modification of the magnetocrystalline anisotropy in transition-metal monolayers by an external electric field. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :187201, May 2009.
- [67] Uwe Bauer, Satoru Emori, and Geoffrey S D Beach. Electric field control of domain wall propagation in Pt/Co/GdOx films. *Applied Physics Letters*, 100(19) :192408, 2012.
- [68] A. Rajanikanth, T. Hauet, F. Montaigne, S. Mangin, and S. Andrieu. Magnetic anisotropy modified by electric field in V/Fe/MgO(001)/Fe epitaxial magnetic tunnel junction. *Applied Physics Letters*, 103(6) :062402, 2013.
- [69] Takayuki Nozaki, Anna Koziol-Rachwał, Witold Skowroński, Vadym Zayets, Yoichi Shiota, Shingo Tamaru, Hitoshi Kubota, Akio Fukushima, Shinji Yuasa, and Yoshishige Suzuki. Large voltage-induced changes in the perpendicular magnetic anisotropy of an mgo-based tunnel junction with an ultrathin fe layer. *Phys. Rev. Applied*, 5 :044006, Apr 2016.
- [70] Xiang Li, Kevin Fitzell, Di Wu, C. Ty Karaba, Abraham Buditama, Guoqiang Yu, Kin L. Wong, Nicholas Altieri, Cecile Grezes, Nicholas Kioussis, Sarah Tolbert, Zongzhi Zhang, Jane P. Chang, Pedram Khalili Amiri, and Kang L. Wang. Enhancement of voltage-controlled magnetic anisotropy through precise control of Mg insertion thickness at Co-FeBIMgO interface. *Applied Physics Letters*, 110(5) :052401, 2017.
- [71] T. H. R. Skyrme. A non-linear field theory. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 260(1300) :127–138, 1961.
- [72] B.A. Ivanov, V.A. Stephanovich, and A.A. Zhmudskii. Magnetic vortices : The microscopic analogs of magnetic bubbles. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 88(1) :116 – 120, 1990.
- [73] Albert Fert, Nicolas Reyren, and Vincent Cros. Magnetic skyrmions : advances in physics and potential applications. 2 :17031+, June 2017.
- [74] Niklas Romming, Christian Hanneken, Matthias Menzel, Jessica E. Bickel, Boris Wolter, Kirsten von Bergmann, André Kubetzka, and Roland Wiesendanger. Writing and deleting single magnetic skyrmions. *Science*, 341(6146) :636–639, 2013.
- [75] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni. Skyrmion lattice in a chiral magnet. *Science*, 323(5916) :915–919, 2009.
- [76] M. Bode, M. Heide, K. von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blugel, and R. Wiesendanger. Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry. 447(7141) :190–193, May 2007.
- [77] Stefan Heinze, Kirsten von Bergmann, Matthias Menzel, Jens Brede, Andre Kubetzka, Roland Wiesendanger, Gustav Bihlmayer, and Stefan Blugel. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Science*, 7(9) :713–718, September 2011.
- [78] Geoffrey S. D. Beach Felix Büttner, Ivan Lemesh. Full phase diagram of isolated skyrmions in a ferromagnet, 2017.
- [79] Seonghoon Woo, Kai Litzius, Benjamin Kruger, Mi-Young Im, Lucas Caretta, Kornel Richter, Maxwell Mann, Andrea Krone, Robert M. Reeve, Markus Weigand, Parnika Agrawal, Ivan Lemesh, Mohamad-Assaad Mawass, Peter Fischer, Mathias Klau, and Geoffrey S. D. Beach. Observation of room-temperature magnetic skyrmions and their current-driven dynamics in ultrathin metallic ferromagnets. *Nature Mat.*, 15(5) :501–506, May 2016.
- [80] Wanjun Jiang, Pramey Upadhyaya, Wei Zhang, Guoqiang Yu, M. Benjamin Jungfleisch, Frank Y. Fradin, John E. Pearson, Yaroslav Tserkovnyak, Kang L. Wang, Olle Heinonen,

- Suzanne G. E. te Velthuis, and Axel Hoffmann. Blowing magnetic skyrmion bubbles. *Science*, 349(6245) :283–286, 2015.
- [81] Guoqiang Yu, Pramey Upadhyaya, Xiang Li, Wenyuan Li, Se Kwon Kim, Yabin Fan, Kin L. Wong, Yaroslav Tserkovnyak, Pedram Khalili Amiri, and Kang L. Wang. Room-temperature creation and spin–orbit torque manipulation of skyrmions in thin films with engineered asymmetry. *Nano Letters*, 16(3) :1981–1988, 2016. PMID : 26848783.
- [82] Olivier Boulle, Jan Vogel, Hongxin Yang, Stefania Pizzini, Dayane de Souza Chaves, Andrea Locatelli, Tevfik O. Menteş, Alessandro Sala, Liliana D. Buda-Prejbeanu, Olivier Klein, Mohamed Belmeguenai, Yves Roussigné, Andrey Stashkevich, Salim M. Chérif, Lucia Aballe, Michael Foerster, Mairbek Chshiev, Stéphane Auffret, Ioan M. Miron, and Gilles Gaudin. Room-temperature chiral magnetic skyrmions in ultrathin magnetic nanostructures. *Nat. Nanotech*, 11(5) :449–454, May 2016.
- [83] C. Moreau Luchaire, C. Moustafis, N. Reyren, J. Sampaio, K. Bouzehouane-K. Garcia C. Deranlot P. Warnicke P. Wohrluter J-M. George M. Weigand J. Raabe V. Cros C. A. F. Vaz, N. Van Horne, and A. Fert. Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature. *Nature Nanotechnology*, 11 :444–448, 2016.
- [84] J. Sampaio, V. Cros, S. Rohart, A. Thiaville, and A. Fert. Nucleation, stability and current-induced motion of isolated magnetic skyrmions in nanostructures. 8(11) :839–844, November 2013.
- [85] Youngbin Tchoe and Jung Hoon Han. Skyrmion generation by current. *Phys. Rev. B*, 85 :174416, May 2012.
- [86] Y. Nakatani, M. Hayashi, S. Kanai, S. Fukami, and H. Ohno. Electric field control of skyrmions in magnetic nanodisks. *Applied Physics Letters*, 108(15) :152403, 2016.
- [87] Pramey Upadhyaya, Guoqiang Yu, Pedram Khalili Amiri, and Kang L. Wang. Electric-field guiding of magnetic skyrmions. *Phys. Rev. B*, 92 :134411, Oct 2015.
- [88] S. Bandiera. *Jonctions tunnel magnétiques à anisotropie perpendiculaire et à écriture assistée thermiquement*. PhD thesis, 2011.
- [89] John Kerr LL.D. Xliii. on rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet. *Philosophical Magazine*, 3(19) :321–343, 1877.
- [90] Mohamed Belmeguenai, Jean-Paul Adam, Yves Roussigné, Sylvain Eimer, Thibaut Devolder, Joo-Von Kim, Salim M. Cherif, Andrey Stashkevich, and André Thiaville. Interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in perpendicularly magnetized Pt/Co/AlOx ultrathin films measured by brillouin light spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 91 :180405, May 2015.
- [91] C. Eylich, A. Zamani, W. Huttema, M. Arora, D. Harrison, F. Rashidi, D. Broun, B. Heinrich, O. Mryasov, M. Ahlberg, O. Karis, P. E. Jönsson, M. From, X. Zhu, and E. Girt. Effects of substitution on the exchange stiffness and magnetization of Co films. *Phys. Rev. B*, 90 :235408, December 2014.
- [92] N. Bergeard. *Matériaux pour l'étude de la dynamique de l'aimantation*. PhD thesis, 2010.
- [93] M. D. Kuz'min. Shape of Temperature Dependence of Spontaneous Magnetization of Ferromagnets : Quantitative Analysis. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :107204, March 2005.
- [94] U. Köbler, J. Englich, O. Hupe, and J. Hesse. Effective spin quantum numbers in iron, cobalt and nickel. *Physica B : Condensed Matter*, 339(4) :156–163, 2003.
- [95] U. Köbler, A. Hoser, and D. Hupfeld. A complete description of the order parameter of Heisenberg-type magnets for  $0 < T < T_c$ . *Physica B : Condensed Matter*, 328 :276, 2003.

- [96] P. J. Metaxas, J. P. Jamet, A. Mougin, M. Cormier, J. Ferré, V. Baltz, B. Rodmacq, B. Dieny, and R. L. Stamps. Creep and flow regimes of magnetic domain-wall motion in ultrathin Pt/Co/Pt films with perpendicular anisotropy. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :217208, Nov 2007.
- [97] V. Grolier, J. Ferré, A. Maziewski, E. Stefanowicz, and D. Renard. Magneto-optical anisotropy of ultrathin cobalt films. *Journal of Applied Physics*, 73(10) :5939–5941, 1993.
- [98] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. Vortices in high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 66 :1125–1388, October 1994.
- [99] N. Bergeard, J. P. Jamet, J. Ferré, A. Mougin, and J. Fassbender. Spin reorientation transition and phase diagram in an He<sup>+</sup> ion irradiated ultrathin Pt/Co(0.5 nm)/Pt film. *Journal of Applied Physics*, 108(10), 2010.
- [100] C. Won, Y. Z. Wu, J. Choi, W. Kim, A. Scholl, A. Doran, T. Owens, J. Wu, X. F. Jin, H. W. Zhao, and Z. Q. Qiu. Magnetic stripe melting at the spin reorientation transition in Fe/Cu(001). *Phys. Rev. B*, 71 :224429, June 2005.
- [101] Arik Yochelis, Aric Hagberg, Ehud Meron, Anna L. Lin, and Harry L. Swinney. Development of Standing-Wave Labyrinthine Patterns. *SIAM Journal on Applied Dynamical Systems*, 1(2) :236–247, 2002.
- [102] V. Gehanno. *Anisotropie magnétique perpendiculaire des couches minces épitaxiées d'alliages ordonnés FePd*. PhD thesis, 1997.
- [103] A. B. Kashuba and V. L. Pokrovsky. Stripe domain structures in a thin ferromagnetic film. *Phys. Rev. B*, 48 :10335–10344, October 1993.
- [104] F.J.A. den Broeder, W. Hoving, and P.J.H. Bloemen. Magnetic anisotropy of multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 93 :562 – 570, 1991.
- [105] Vineeth Mohanan Parakkat, K. R. Ganesh, and P. S. Anil Kumar. Tailoring curie temperature and magnetic anisotropy in ultrathin Pt/Co/Pt films. *AIP Advances*, 6(5) :056118, 2016.
- [106] D. Kerkmann, D. Pescia, and R. Allenspach. Two-dimensional magnet at curie temperature : Epitaxial layers of Co on Cu(100). *Phys. Rev. Lett.*, 68 :686–689, Feb 1992.
- [107] M. Heide, G. Bihlmayer, and S. Blügel. Dzyaloshinskii-Moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films : Fe/W(110). *Phys. Rev. B*, 78 :140403, Oct 2008.
- [108] M Vaňatka, J-C Rojas-Sánchez, J Vogel, M Bonfim, M Belméguenai, Y Roussigné, A Stashkevich, A Thiaville, and S Pizzini. Velocity asymmetry of Dzyaloshinskii domain walls in the creep and flow regimes. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 27(32) :326002, 2015.
- [109] F. Ando, H. Kakizakai, T. Koyama, K. Yamada, M. Kawaguchi, S. Kim, K. J. Kim, T. Moriyama, D. Chiba, and T. Ono. Modulation of the magnetic domain size induced by an electric field. *Applied Physics Letters*, 109(2), 2016.
- [110] G. Asti, M. Ghidini, M. Mulazzi, R. Pellicelli, M. Solzi, K. Chesnel, and A. Marty. Nucleation of weak stripe domains : Determination of exchange and anisotropy thermal variation. *Phys. Rev. B*, 76 :094414, Sep 2007.
- [111] Abderrezak Belabbes, Gustav Bihlmayer, Stefan Blügel, and Aurélien Manchon. Oxygen-enabled control of Dzyaloshinskii-Moriya Interaction in ultra-thin magnetic films. 6 :24634+, April 2016.

- [112] U. Atxitia, D. Hinzke, O. Chubykalo-Fesenko, U. Nowak, H. Kachkachi, O. N. Mryasov, R. F. Evans, and R. W. Chantrell. Multiscale modeling of magnetic materials : Temperature dependence of the exchange stiffness. *Phys. Rev. B*, 82 :134440, Oct 2010.
- [113] R. Moreno, R. F. L. Evans, S. Khmelevskiy, M. C. Muñoz, R. W. Chantrell, and O. Chubykalo-Fesenko. Temperature-dependent exchange stiffness and domain wall width in co. *Phys. Rev. B*, 94 :104433, Sep 2016.
- [114] Y. O. Kvashnin, W. Sun, I. Di Marco, and O. Eriksson. Electronic topological transition and noncollinear magnetism in compressed hcp co. *Phys. Rev. B*, 92 :134422, Oct 2015.
- [115] I. Turek, J. Kudrnovský, V. Drchal, P. Bruno, and S. Blügel. Ab initio theory of exchange interactions in itinerant magnets. *physica status solidi (b)*, 236(2) :318–324, 2003.
- [116] G. D. Wilk, R. M. Wallace, and J. M. Anthony. High-k gate dielectrics : Current status and materials properties considerations. *Journal of Applied Physics*, 89(10) :5243–5275, 2001.
- [117] Xinyuan Zhao and David Vanderbilt. First-principles study of structural, vibrational, and lattice dielectric properties of hafnium oxide. *Phys. Rev. B*, 65 :233106, Jun 2002.
- [118] Kaupo Kukli, Jarkko Ihanus, Mikko Ritala, and Markku Leskela. Tailoring the dielectric properties of hfo<sub>2</sub>-ta<sub>2</sub>o<sub>5</sub> nanolaminates. *Applied Physics Letters*, 68(26) :3737–3739, 1996.
- [119] Hyounghub Kim, Paul C. McIntyre, and Krishna C. Saraswat. Effects of crystallization on the electrical properties of ultrathin hfo<sub>2</sub> dielectrics grown by atomic layer deposition. *Applied Physics Letters*, 82(1) :106–108, 2003.
- [120] Y. Rozier. *Caractérisation d'oxydes cristallins à haute permittivité (LaAlO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub>) en vue d'une intégration en microélectronique*. PhD thesis, 2007.
- [121] F Bonell, S Murakami, Y Shiota, T Nozaki, T Shinjo, and Y Suzuki. Large change in perpendicular magnetic anisotropy induced by an electric field in FePd ultrathin films. *Applied Physics Letters*, 98(23) :232510, 2011.
- [122] Koji Kita, David W. Abraham, Martin J. Gajek, and D. C. Worledge. Electric-field-control of magnetic anisotropy of Co<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.2</sub>B<sub>0.2</sub>/oxide stacks using reduced voltage. *Journal of Applied Physics*, 112(3) :33919, 2012.
- [123] M. Oba, K. Nakamura, T. Akiyama, T. Ito, M. Weinert, and A. J. Freeman. Electric-Field-Induced Modification of the Magnon Energy, Exchange Interaction, and Curie Temperature of Transition-Metal Thin Films. *Phys. Rev. Lett.*, 114 :107202, March 2015.
- [124] T. Dohi, S. Kanai, A. Okada, F. Matsukura, and H. Ohno. Effect of electric-field modulation of magnetic parameters on domain structure in mgo/cofeb. *AIP Advances*, 6(7) :075017, 2016.
- [125] Kohei Nawaoka, Shinji Miwa, Yoichi Shiota, Norikazu Mizuochi, and Yoshishige Suzuki. Voltage induction of interfacial Dzyaloshinskii–Moriya interaction in Au/Fe/MgO artificial multilayer. *Applied Physics Express*, 8(6) :063004+, June 2015.
- [126] H. Yang, O. Boule, V. Cros, A. Fert, and M. Chshiev. Controlling dzyaloshinskii-moriya interaction via chirality dependent layer stacking, insulator capping and electric field, 2016.
- [127] Y. Zhou, E. Iacocca, A. A. Awad, R. K. Dumas, F. C. Zhang, H. B. Braun, and J. Åkerman. Dynamically stabilized magnetic skyrmions. 6 :8193+, September 2015.
- [128] Pin-Jui Hsu, André Kubetzka, Aurore Finco, Niklas Romming, Kirsten von Bergmann, and Roland Wiesendanger. Electric-field-driven switching of individual magnetic skyrmions. 12(2) :123–126, February 2017.

- [129] M. Finazzi, M. Savoini, A. R. Khorsand, A. Tsukamoto, A. Itoh, L. Duò, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and M. Ezawa. Laser-induced magnetic nanostructures with tunable topological properties. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :177205, Apr 2013.
- [130] Y. Nii, T. Nakajima, A. Kikkawa, Y. Yamasaki, K. Ohishi, J. Suzuki, Y. Taguchi, T. Arima, Y. Tokura, and Y. Iwasa. Uniaxial stress control of skyrmion phase. 6 :8539+, October 2015.
- [131] J. A. Cape and G. W. Lehman. Magnetic domain structures in thin uniaxial plates with perpendicular easy axis. *Journal of Applied Physics*, 42(13) :5732–5756, 1971.
- [132] A. H. Bobeck. Properties and device applications of magnetic domains in orthoferrites. *Bell System Technical Journal*, 46(8) :1901–1925, 1967.
- [133] Marine Schott, Anne Bernard-Mantel, Laurent Ranno, Stefania Pizzini, Jan Vogel, Hélène Béa, Claire Baraduc, Stéphane Auffret, Gilles Gaudin, and Dominique Givord. The skyrmion switch : Turning magnetic skyrmion bubbles on and off with an electric field. *Nano Letters*, 17(5) :3006–3012, 2017. PMID : 28437086.
- [134] P. Talagala, P. S. Fodor, D. Haddad, R. Naik, L. E. Wenger, P. P. Vaishnava, and V. M. Naik. Determination of magnetic exchange stiffness and surface anisotropy constants in epitaxial Ni(1-x)Co(x)(001) films. *Phys. Rev. B*, 66 :144426, October 2002.
- [135] P. Bruno. Magnetization and curie temperature of ferromagnetic ultrathin films : The influence of magnetic anisotropy and dipolar interactions (invited). *MRS Proceedings*, 231, 1991.
- [136] Ar. Abanov, V. Kalatsky, V. L. Pokrovsky, and W. M. Saslow. Phase diagram of ultrathin ferromagnetic films with perpendicular anisotropy. *Phys. Rev. B*, 51 :1023–1038, Jan 1995.
- [137] O. Portmann, A. Vaterlaus, and D. Pescia. Observation of Stripe Mobility in a Dipolar Frustrated Ferromagnet. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :047212, February 2006.
- [138] O. Portmann, A. Vaterlaus, and D. Pescia. An inverse transition of magnetic domain patterns in ultrathin films. 422(6933) :701–704, April 2003.
- [139] M. Franz and S. Teitel. Vortex-lattice melting in two-dimensional superconducting networks and films. *Phys. Rev. B*, 51 :6551–6574, Mar 1995.
- [140] K. De’Bell, A. B. MacIsaac, and J. P. Whitehead. Dipolar effects in magnetic thin films and quasi-two-dimensional systems. *Rev. Mod. Phys.*, 72 :225–257, January 2000.





## Résumé

Dans le cadre de cette thèse nous nous sommes intéressés aux nouveaux effets liés à l'accumulation de charges électriques au sein de films magnétiques ultraminces, aussi appelés effets de champ électrique. Nous avons étudié l'effet de l'application d'un champ électrique sur les différents paramètres magnétiques de nos films, via des mesures de magnéto-transport et magnéto-optique. Ces mesures ont été conduites sur des tri-couches de  $Pt/Co/AlO_x$  présentant un gradient d'oxydation pour l'alumine. L'oxydation de cette interface étant contrôlée à l'échelle nanométrique, une large gamme de paramètres magnétiques est donc accessible au sein d'un seul et même échantillon. Ceci représente un très bon outil d'étude pour les différents phénomènes intervenant dans ces tri-couches. La caractérisation fine de ces échantillons a permis de mettre en évidence une zone pour laquelle des propriétés très intéressantes ont été observées (domaines périodiques en labyrinthe liés à une forte interaction de Dzyaloshinskii-Moriya, bulles skyrmioniques). La proximité de la température de Curie ( $T_c$ ) de cette zone avec la température de mesure (ambiante) en est la cause principale. Ces bulles skyrmioniques font actuellement l'objet de beaucoup de recherche au niveau national et international, étant considérées comme potentiellement très attractives pour des applications de type mémoire et logique magnétique. L'originalité de ce travail de thèse a été de montrer que ces bulles skyrmioniques sont fortement influencées par le champ électrique, dû au fort contrôle des propriétés magnétiques de cette zone (anisotropie, champ coercitif, aimantation à saturation, facteur  $DMI$ ). Nous proposons le design d'un interrupteur nanométrique permettant de créer ou effacer ces bulles skyrmioniques grâce à une tension, levant ainsi un verrou important pour la mémoire/logique magnétique basée sur ces bulles skyrmioniques. La potentialité de ces nouveaux effets pour réaliser un renversement d'aimantation/une création de bulles skyrmioniques, assistés par champ électrique, a été étudiée à température ambiante, ce qui est compatible avec les applications.

## Abstract

During my PhD, we chose to study the particular effects that are linked to the electric charge accumulation in the nano-magnet. This effect, also known as the electric field effect, was studied on the different magnetic properties of our films. They were probed by magneto-transport and magneto-optical measurements. These measurements were conducted on asymmetric  $Pt/Co/AlO_x$  trilayers. These structures were sputter-deposited on a wedge shape for the alumina. This leads to a nanometric control of the oxidation degree of the interface. Then, a wide range of magnetic parameters is available on a unique sample. Systematic characterization of these structures showed an interesting zone for magnetic properties (spontaneous stripe domains linked to a strong Dzyaloshinskii-Moriya interaction, skyrmionic bubbles). The observation of this type of magnetic object is directly linked to the weak Curie temperature ( $T_c$ ) of this zone (close to room temperature). Skyrmionic bubbles are subject to lots of international studies. They are potentially attractive for memories or logic devices development. The key result of this PhD was to show the strong dependence of magnetic skyrmionic bubbles with electric field application. The full electrical switch of these objects has been achieved, due to the strong electrical control of the different magnetic properties. These electric-field assisted magnetisation reversal/skyrmionic bubbles nucleation studies were performed at room temperature, which is compatible with applications.