



HAL
open science

Elaboration et caractérisation de systèmes magnétiques pour l'observation de skyrmions

Chloé Bouard

► **To cite this version:**

Chloé Bouard. Elaboration et caractérisation de systèmes magnétiques pour l'observation de skyrmions. Autre [cond-mat.other]. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAY084 . tel-01795029

HAL Id: tel-01795029

<https://theses.hal.science/tel-01795029>

Submitted on 18 May 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 : **Nanophysique**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Chloé BOUARD

Thèse encadrée par **Patrick WARIN** et dirigée par **Alain MARTY**

préparée au sein du **Laboratoire Spintronique et Technologie
des Composants, CEA**
dans l'**École Doctorale de Physique**

**Élaboration et caractérisation de
systèmes magnétiques pour
l'observation de skyrmions.**

**Elaboration and characterization of
magnetic systems for skyrmion
observation.**

Thèse soutenue publiquement le **7 décembre 2017**,
devant le jury composé de :

Monsieur André THIAVILLE

Directeur de Recherche, CNRS - Université Paris-Sud, Président du Jury

Madame Marie-José CASANOVE

Directrice de Recherche, CNRS Midi-Pyrénées, Rapporteur

Monsieur Thomas HAUET

Maître de Conférences, CNRS - Université de Lorraine, Rapporteur

Madame Véronique PIERRON-BOHNES

Directrice de Recherche, CNRS - Université de Strasbourg, Examineur

Monsieur Bruno GILLES

Directeur de Recherche, CNRS - Grenoble INP, Examineur



À la mémoire de Mamie Noelle.

Remerciements

La thèse est comme un bon livre. On la commence doucement, avec prudence, sans trop savoir à quoi s'attendre. L'espoir d'une grande et belle histoire se mêlant à l'appréhension de la déception et de l'impasse. Puis on rencontre les différents personnages. Certains sont très attachants depuis le début, d'autres sont plus complexes et nécessitent quelques chapitres pour laisser apercevoir toute leur richesse. Certains ne font qu'une petite apparition mais sont primordiaux pour le bon déroulement du récit. L'histoire commence très fort. Elle éveille un intérêt et une curiosité sans pareil. Et pourtant, après un certain nombre de chapitres, l'intrigue semble stagner, voire repartir en arrière. Alors on se lasse, on s'énerve, on a envie de refermer le livre. C'est à ce moment-là que la richesse des personnages prend toute son importance. Ce sont eux qui nous poussent à continuer la lecture, promettant que la suite a un intérêt. Ce sont eux qui nous persuadent que notre place dans cette histoire est justifiée. Alors on continue, parce que malgré tout, on veut connaître la fin. Mais plus on approche de la fin, plus on la redoute. Les derniers chapitres sont particulièrement difficiles à lire. Mais on ne peut plus s'arrêter, pas si près du but. Alors on tient le coup, on lit, méthodiquement, page après page. Et lorsque qu'arrive la dernière page, l'excitation de découvrir le dénouement de l'histoire nous tord les boyaux. On a peur de lire cette dernière page. Peur que l'aventure s'arrête. On sait qu'il n'y a pas de suite à cette histoire. Il faudra trouver un autre roman, parmi un choix presque sans limite. On prend alors une grande respiration, et on lit. La fin est belle, particulièrement intense en émotion. Tous les personnages apparaissent une dernière fois. La plupart d'entre eux n'appartiennent qu'à cette histoire, alors on est triste, mais en même temps tellement heureux d'avoir eu la chance de partager ce récit auprès d'eux. Pour les revoir il suffira de rouvrir le livre à la bonne page.

Comme vous l'avez compris, cette thèse, cette aventure, n'a été possible que par la présence de personnes exceptionnelles, que ce soit au travail ou dans la vie personnelle. Chacun à sa façon m'a apporté un soutien et une force immenses. Il est temps désormais d'exprimer ma gratitude à tous ces protagonistes.

Je remercie tout d'abord le jury, qui m'a fait l'honneur d'évaluer mon travail. Merci à André Thiaville d'avoir endossé le rôle de président du jury. Merci à Marie-José Casanove et Thomas Hauet pour avoir lu et commenté mon manuscrit. Merci à Véronique Pierron-Bohnes et Bruno Gilles d'avoir accepté de faire partie de mon jury. Merci à tous pour vos commentaires et vos critiques constructives.

Un grand merci à mes encadrants, Patrick et Alain, sans qui l'aboutissement de ce travail n'aurait pas été possible.

Patrick, tu m'as prise en main (sans mauvais jeu de mots) dès le premier jour. Tu m'as formée sur de nombreux équipements, expliqué de nombreux phénomènes physiques d'une façon claire, et m'a poussée à utiliser des mots plutôt que des onomatopées pour décrire des observations. Tu m'as fait confiance pendant ces trois années pour mener (à bien je l'espère) un travail de recherche complexe. Tu m'as laissé beaucoup d'autonomie tout en étant présent et à ma disposition dès que le besoin s'en faisait sentir. Merci de m'avoir guidée dans cette aventure.

Alain, tu es une personne hors du commun. Ton savoir semble sans limite. Et même lorsque tu ne sais pas, tu sais quand même. Une simple discussion avec toi permet de résoudre en cinq minutes des problèmes qui me taraudaient depuis presque trois ans. Tu es d'une bonté pure et sincère. Je tiens tout particulièrement à te remercier pour la fin de ma thèse. Tu as été très présent les derniers mois, tu m'as beaucoup aidé pour la rédaction, mais surtout, tu m'as apporté de la sérénité (en particulier ton stress pour les trucs administratifs m'a permis de réduire un peu le mien, désolée).

Merci aux collègues, qui m'ont accompagnée au quotidien. Le plaisir de vous voir tous les jours me donnait l'envie de me lever le matin.

Ariel, toujours volontaire pour donner un coup de main, toujours à mettre les besoins des autres avant les tiens. Merci pour ta gentillesse, ton paternalisme et ta générosité. Certains ont des bons côtés, toi tu as de très beaux coings.

Matthieu, tu es une telle force de travail ! Et pourtant toujours un petit mot pour rire aussi. Tu m'impressionnes par ton énergie. Merci pour tes conseils avisés qui m'ont aidée à faire une belle thèse.

Robert, merci de t'occuper du bon déroulement de la vie quotidienne du laboratoire. Sans toi les collègues dépériraient.

Cyrille, merci pour ta bonne humeur et ton aide pour des petites choses qui semblent insignifiantes mais qui sont en réalité primordiales. Merci aussi pour tes conseils en matières de séries télévisées.

Jean-Philippe, merci pour ta précieuse aide pour la rédaction d'un papier alors que tu avais déjà tant à faire avec tes propres thésards. Merci aussi d'avoir partagé avec moi ton expérience et tes conseils par rapport à l'enseignement. Et merci pour ta musique qui est bien bien cool.

Laurent, merci pour ton intérêt, ta bonne humeur, ta motivation. Tu m'a fait croire en moi et en mon travail à des moments où j'étais un peu perdue. Et merci pour l'organisation des réunions dans notre "*second office*" (*dixit* Tuong) et sur la neige.

Lucien, merci de m'avoir acceptée dans ton bureau pendant trois ans. J'ai été ravie d'avoir cette chance inouïe de partager ce petit espace confiné avec quelqu'un comme toi, foncièrement gentil, généreux, protecteur, intéressant, et d'une humilité incroyable.

Céline, je te remercie pour ta bonne humeur, ton amitié, pour les discussions plus ou moins sérieuses qu'on a eu ensemble. Je te souhaite de faire une belle thèse. J'espère que je serai là pour fêter ça avec toi.

Je remercie également les pas-vraiment-collègues, avec qui j'ai eu la chance de travailler ponctuellement. Merci à Stéphanie aux rayons X, Jean-François au SQUID, Pierre et Alain aux muons, Nicolas au tripode, Jean-Luc, Hanako et Aurélien au TEM, Olivier et Simon au MFM. Votre aide, vos conseils et votre bienveillance ont grandement contribué à l'enrichissement de mon travail.

Merci également aux thésards et stagiaires, pour ne pas dire amis, qui participent énormément à la bonne ambiance du laboratoire et à l'envie de revenir le lendemain matin : Jérémie, Fabien, Yu, Tuong, Paul, Thomas, Marie, Tuan, Gilles...

Je voudrais maintenant remercier ces fous qui ont fait le choix de passer du temps avec moi. Je ne me suis jamais sentie aussi bien entourée qu'avec vous les copains. Même si tout s'était mal passé je n'aurais pas regretté d'avoir vécu cette aventure parce que je vous ai rencontrés. Merci à Alex, Mawine, Yannou, Kawim, Ketty, Émilie, Alexis, Sylvain, Élie, Gogo et bien d'autres pour les apéros et les après-midi jeux qui m'ont permis de m'évader et de faire un peu taire ma caboche qui ne s'arrête jamais de tourner. Merci à Gillou pour les sorties en montagne. Tu me l'as fait découvrir comme je ne la connaissais pas. Merci à Solveig aussi pour les sorties montagne et grimpe. Mais aussi pour les soirées rien du tout, parce que passer du temps avec toi c'est toujours rigôlô !

Je remercie évidemment ma famille, qui a cru en moi avant même que je ne débute cette aventure, et sans qui je ne serais jamais arrivée jusqu'ici.

Et enfin, un remerciement tout particulier pour une personne qui est arrivée au cours de cette aventure : Thomas. Tu as fait preuve d'une patience incroyable envers moi, tu m'as apporté ton soutien, tu m'as donné le sourire à des moments où j'avais à peine la force d'ouvrir les yeux, et tu as été présent jusqu'au bout. Je ne te remercierai jamais assez pour tout ça. J'espère que tu feras partie de toutes mes aventures futures.

Merci à tous d'avoir rendu cette aventure aussi riche, passionnante, excitante et épanouissante.

Sommaire

| | |
|---|------|
| Remerciements | iii |
| Sommaire | viii |
| Liste des acronymes | ix |
| INTRODUCTION | 1 |
| CHAPITRE 1 : Élaboration et caractérisation structurale | 5 |
| I État de l'art matériaux | 7 |
| A. Systèmes volumiques non centrosymétriques | 8 |
| B. Systèmes à interfaces non symétriques | 12 |
| II Élaboration de couches minces magnétiques | 19 |
| A. Techniques de dépôt | 19 |
| B. Techniques de caractérisations structurales | 22 |
| III Développement d'un protocole de croissance pour les couches minces de FeGe B20 | 27 |
| A. Croissance par pulvérisation à température ambiante | 28 |
| B. Croissance par interdiffusion | 30 |
| C. Codépôt à haute température | 37 |
| IV Détermination des multicouches [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2] _n | 51 |
| A. Choix des métaux lourds | 51 |
| B. Développement et caractérisation des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 55 |
| C. Développement et caractérisation des multicouches [Pt/Co/W] _n | 63 |
| CHAPITRE 2 : Propriétés magnétiques et renversement d'aimantation | 67 |
| I Techniques de caractérisation magnétique | 69 |
| A. Magnétométrie | 69 |

| | | |
|------------|--|------------|
| B. | Imagerie magnétique | 72 |
| C. | Autres techniques | 77 |
| II | Mesures de magnéto-transport | 79 |
| A. | Magnétorésistances longitudinales | 79 |
| B. | Mesures de Hall | 81 |
| III | Caractérisations magnétiques des couches minces de FeGe | 85 |
| A. | Effet Hall topologique dans les couches minces de FeGe | 85 |
| B. | Direction de propagation des hélices magnétiques déterminée par spectroscopie Mössbauer | 90 |
| C. | Spectroscopie par rotation de spin du muon | 94 |
| D. | Conclusion et perspectives pour les couches minces de FeGe | 101 |
| IV | Étude des propriétés magnétiques des multicouches [Au/Co/Pd]_n | 103 |
| A. | Effets de taille sur la texture magnétique des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 103 |
| B. | Imagerie magnétique et spectroscopie des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 110 |
| C. | Conclusion et perspectives pour les multicouches [Au/Co/Pd] _n | 117 |
| V | Dépendance en épaisseurs des propriétés magnétiques des multicouches [Pt/Co/W]₁₀ | 119 |
| A. | Cartographies magnétiques | 119 |
| B. | Extraction des paramètres magnétiques | 125 |
| C. | Conclusion et perspectives pour les multicouches [Pt/Co/W] _n | 127 |
| | CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES | 129 |
| | Bibliographie | 133 |

Liste des acronymes

| | |
|----------|--|
| μ SR | <i>muon spin rotation</i> = spectroscopie de muons |
| AFM | microscopie à force atomique |
| AMR | magnéto-résistance anisotrope |
| BLS | <i>Brillouin light scattering</i> = spectroscopie Brillouin |
| DMI | interaction de Dzyaloshinskii-Moriya |
| DPC | contraste de phase différentiel |
| DWR | <i>domain wall resistance</i> = résistance de paroi de domaine |
| EDS | spectroscopie à dispersion d'énergie |
| EHE | effet Hall extraordinaire |
| EHO | effet Hall ordinaire |
| EHT | effet Hall topologique |
| EJM | épitaxie à jet moléculaire |
| FM | matériau ferromagnétique |
| GMR | magnéto-résistance géante |
| HAADF | <i>high angular annular dark-field</i> |
| MEB | microscopie électronique à balayage |
| MET | microscopie électronique en transmission |
| MET-HR | MET à haute résolution |
| MET-L | MET en mode Lorentz |
| METB | MET à balayage |
| MFM | microscopie à force magnétique |
| ML | métal lourd (à fort couplage spin-orbite) |
| MMR | magnéto-résistance de magnons |
| MOKE | effet Kerr magnéto-optique |
| MR | magnéto-résistance |

| | |
|--------|---|
| RHEED | <i>reflection high energy electron diffraction</i> |
| SANS | <i>small angle neutron scattering</i> = diffusion de neutrons aux petits angles |
| SHE | effet Hall de spin |
| SP-STM | <i>spin-polarized scanning tunneling microscopy</i> |
| STT | <i>spin transfer torque</i> = couple de transfert de spin |
| TF | transformée de Fourier |
| TIE | <i>transport-of-intensity equation</i> |
| u.a. | unité arbitraire |
| VSM | magnétomètre à échantillon vibrant |

Introduction générale

La demande en capacité de stockage et en efficacité de transport de l'information augmente sans cesse, à un point tel que les dispositifs utilisés actuellement approchent de leurs limites physiques. La mise en place d'une nouvelle technologie devient alors impérative. Dans ce cadre, l'utilisation de la spintronique s'est déjà révélée très utile. La spintronique consiste en l'exploitation du moment magnétique, ou spin, de l'électron en plus de sa charge. Cela se traduit par la modification du transport électronique en fonction de la structure d'aimantation du matériau traversé. La première mise en évidence de l'intérêt de la spintronique date de 1988 avec la découverte de la magnétorésistance géante (GMR) par Fert *et al.* [1] et Grünberg *et al.* [2]. La GMR est basée sur le principe que la résistance "ressentie" par un électron de conduction dépend de l'orientation de son moment magnétique par rapport à la direction d'aimantation du matériau traversé. Il est alors possible, par une simple mesure de résistance électrique, de détecter l'information codé magnétiquement. Ce phénomène physique est à la base de la technologie des têtes de lecture des disques durs actuels qui a permis d'augmenter considérablement la densité de stockage. Sur le même principe, la magnétorésistance à effet tunnel (TMR) a été découverte en 1975 [3] et mise en évidence à température ambiante en 1995 [4]. La TMR a montré son fort potentiel pour le développement de capteurs ultra sensibles et de mémoires non volatiles denses et à faible coût énergétique (MRAM pour *magnetic random access memory*).

L'exploitation du spin de l'électron permet d'autre part de manipuler la structure d'aimantation par transfert de moment de spin (STT pour *spin transfer torque*). Cet effet, prédit en 1996 par Slonczewski *et al.* [5] et Berger *et al.* [6], se traduit par le transfert du moment angulaire des électrons à l'aimantation locale lorsqu'un courant électrique traverse une configuration magnétique inhomogène. Le STT permet alors de renverser l'aimantation d'une couche [7, 8], et donc d'écrire une information dans la mémoire, par application d'un simple courant électrique. L'utilisation d'un courant électrique plutôt que d'un champ magnétique permet de réduire la consommation en énergie ainsi que la taille du bit. Le STT présente également un fort potentiel pour le déplacement de parois de domaines magnétiques par l'application d'un courant électrique [9, 10, 11, 12]. Ce phénomène est à l'origine de l'idée de la mémoire *racetrack* [13] qui utilise la paroi magnétique comme brique élémentaire du codage informatique. Cette mémoire non volatile permettrait de développer un enregistrement tridimensionnel et ainsi d'augmenter considérablement les capacités de stockage. La figure 1 présente le schéma de principe de la mémoire *racetrack*, les pistes de lecture et d'écriture étant représentées en bas de l'image, et l'injection de courant pour le déplacement des parois en haut à gauche. Cependant, la densité de courant nécessaire au mouvement de la paroi est encore élevée

($\sim 10^{11} - 10^{12}$ A/m²), induisant d'importants effets de chauffage ohmique. En outre, les parois de domaines magnétiques sont très sensibles à la présence de défauts structuraux, et peuvent être piégées aléatoirement, rendant leur déplacement difficile à contrôler.

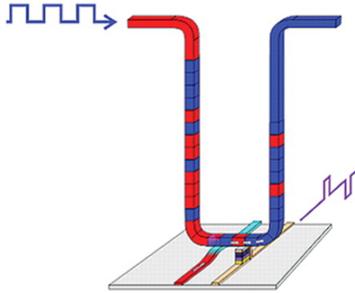


Fig. 1 – Schéma de principe de la mémoire racetrack proposée par Parkin et al. [13]

Une alternative à la mémoire *racetrack* a récemment été proposée. Un objet magnétique plus robuste et moins sensible aux perturbations extérieures que les parois de domaines a été découvert : le skyrmion. Le skyrmion est une texture magnétique non triviale topologiquement stable. Le terme "skyrmion" provient du physicien Tony Skyrme [14]. Il y a plus de 50 ans il propose une théorie pour expliquer la stabilité des hadrons. Cette théorie consiste à décrire ces particules comme des solitons topologiques dans un champ vectoriel. Cette théorie n'a pas été retenue en physique des particules, mais a inspiré de nombreux physiciens dans d'autres domaines, en particulier dans le domaine du nanomagnétisme. Le skyrmion magnétique se présente sous la forme d'un tourbillon de spins, le spin central étant anti-parallèle aux spins de la périphérie. Il est caractérisé par un nombre topologique, ou indice d'enroulement, égal à ± 1 :

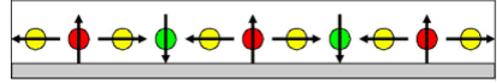
$$S = \frac{1}{4\pi} \int \hat{\mathbf{m}} \cdot \left(\frac{\partial \hat{\mathbf{m}}}{\partial x} \times \frac{\partial \hat{\mathbf{m}}}{\partial y} \right) dx dy = \pm 1$$

avec $\hat{\mathbf{m}}$ le vecteur unitaire parallèle au moment magnétique local. Cet indice, lorsqu'il est égal à un entier non nul, témoigne de la stabilité topologique de l'objet en question. Dans ce cas précis, cela signifie qu'il n'est pas possible de passer de l'état ferromagnétique, où tous les spins sont alignés, à l'état de skyrmions de façon continue. La stabilité du skyrmion lui confère un comportement de pseudo-particule, particulièrement intéressant pour des applications de transport de l'information. Il a été avancé que cette protection topologique permettrait au skyrmion d'être nettement moins sensible aux défauts structuraux que les parois de domaines classiques [15]. Cependant, même si son potentiel pour des applications dans la technologie de l'information n'est pas remis en cause, sa protection topologique est largement discutée aujourd'hui [16, 17].

Le skyrmion a été observé pour la première fois en 2009 dans l'alliage MnSi, matériau héliomagnétique [18, 19, 20], puis en 2011 dans une couche mince magnétique (Fe/Ir (111)) [21]. Sa petite taille (≤ 20 nm dans ces deux systèmes) est très attractive pour le développement d'un dispositif de stockage d'information ultra-dense. Le skyrmion est alors devenu un sujet d'étude très actif. L'interaction de Dzyaloshinskii–Moriya (DMI) [?, 22, 23] est, dans la majorité des systèmes étudiés de nos jours, à l'origine de la formation du skyrmion. Cette interaction chirale, créée par couplage spin-orbite, est induite par l'absence de symétrie d'inversion dans des structures cristallines non centrosymétriques telles que la structure B20 du MnSi et du FeGe, ou par la rupture de la symétrie d'inver-

sion à l'interface de couches minces magnétiques. La DMI entre deux spins atomiques \mathbf{S}_1 et \mathbf{S}_2 peut s'exprimer ainsi :

$$H_{DM} = -\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$$



avec \mathbf{D}_{12} le vecteur de DMI qui dépend du système étudié. La configuration magnétique de plus basse énergie induite par la DMI est un arrangement orthogonal des spins. Ainsi, la compétition entre l'interaction d'échange, qui tend à aligner les spins entre eux, l'anisotropie, qui introduit une direction de facile aimantation, et la DMI, conduit à la formation de structures magnétiques en hélices et éventuellement en skyrmions. Il est également possible d'observer un autre type de texture magnétique similaire en l'absence de DMI. Ces textures sont des bulles magnétiques simples, stabilisées par l'énergie dipolaire. Ces bulles magnétiques, contrairement aux skyrmions, n'ont pas une chiralité définie, c'est-à-dire que les moments magnétiques n'ont pas un sens de rotation préférentiel. Cette caractéristique, qui définit la nature d'un skyrmion et qui est à l'origine de nombreuses de ses propriétés intéressantes, est parfois oubliée. C'est ainsi qu'aujourd'hui on trouve régulièrement dans la littérature des "skyrmions dipolaires" sans DMI et non chiraux. Ici nous considérerons que la DMI est nécessaire à la formation d'un skyrmion et qu'une chiralité définie est suffisante pour qualifier de skyrmionique une bulle magnétique.

Dès 2010 le skyrmion a montré son aptitude à être déplacé sous un courant faible ($\sim 10^6$ A/m²) par l'observation de la rotation du réseau de skyrmions dans un cristal de MnSi [24] puis dans un cristal de FeGe [25]. Le déplacement sous courant d'un skyrmion isolé le long d'un nanofil gravé dans une couche mince magnétique a été démontré plus récemment [26, 27]. Des vitesses supérieures à 100 m/s ont été observées pour des densités de courant appliquées de $5 \cdot 10^{11}$ A/m². La DMI ayant pour effet de repousser le seuil de Walker [28] (seuil en champ ou en courant au-delà duquel la vitesse de la paroi magnétique chute drastiquement), il devient possible d'atteindre des vitesses importantes. Néanmoins, l'utilisation du skyrmion pour des applications technologiques suppose la possibilité de le créer et de l'annihiler de façon contrôlée, ainsi que de le détecter avec fiabilité. Plusieurs techniques sont proposées pour l'écriture d'un skyrmion. L'injection verticale d'un courant polarisé en spins [29, 15], une impulsion laser [30], la conversion d'une paire de parois de domaines en skyrmion [31], l'exploitation de la géométrie des nanostructures [26, 32], ou encore l'application d'un champ électrique [33, 34] sont autant de pistes de création explorées. Les skyrmions peuvent ensuite être détectés, voire comptés, par magnétorésistance à effet tunnel, par effet Hall extraordinaire [35], par magnétorésistance non colinéaire [36], ou par effet Hall topologique [37, 38] qui est la technique la plus étudiée actuellement.

Le skyrmion a rapidement montré son fort potentiel pour des applications dans le domaine de la spintronique [39, 40, 41]. Sa petite taille (entre 1 nm et 1 μ m) fait de lui un excellent candidat à l'élaboration d'un dispositif de stockage ultra-dense. Le skyrmion serait également parfaitement adapté au principe de fonctionnement des mémoires de type *racetrack*. En effet, le skyrmion aurait la capacité de "contourner" des défauts présents dans les nanofils [15], et serait également mobile sous des densités de courant beaucoup plus faibles que ceux nécessaires à l'initiation du mouvement d'une paroi magnétique classique ($\sim 10^6$ A/m²) [39]. Cependant, l'élaboration de systèmes facilement intégrables à des dispositifs industriels, ainsi que la détection fiable de la présence de skyrmions et la mesure de la DMI sont encore délicates aujourd'hui. Ces deux problématiques, appliquées à deux types de systèmes, font l'objet de cette thèse.

Le manuscrit est divisé en deux parties. La première partie traitera de l'élaboration et de l'étude structurale de deux systèmes, tandis que la seconde discutera les résultats magnétiques obtenus sur chacun d'eux.

Dans un premier temps, je présenterai un état de l'art non exhaustif des systèmes dans lesquels des skyrmions ont été observés. À l'issue de celui-ci, deux systèmes d'étude seront abordés : les couches minces épitaxiées de FeGe B20 et les multicouches du type [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2]_n, telles que les deux métaux lourds soient différents. Avant la description de l'élaboration de ces deux systèmes, je présenterai rapidement les techniques de dépôts (pulvérisation cathodique et épitaxie par jet moléculaire) et de caractérisation structurale (diffraction de rayons X et microscopie électronique en transmission) utilisées au cours de cette thèse. J'exposerai alors d'abord le développement du protocole de croissance de couches minces de FeGe par pulvérisation cathodique en m'appuyant principalement sur les caractérisations structurales réalisées par diffraction de rayons X. J'expliquerai ensuite les choix de matériaux et d'épaisseurs dans l'élaboration du second système. Ces choix, basés sur des considérations magnétiques, mèneront à la sélection des multicouches suivantes : [Au(10 Å)/Co(6-8 Å)/Pd(10 Å)]₁₀ et [Pt(6-12 Å)/Co(6-12 Å)/W(6-12 Å)]₁₀, dont les structures seront caractérisées entièrement.

La deuxième partie de ce manuscrit traitera des propriétés magnétiques des systèmes précédemment développés. De nombreuses techniques de caractérisation magnétique sont utilisées au cours de cette thèse. Après la présentation de celles-ci, j'exposerai les résultats obtenus sur les couches minces de FeGe. Je montrerai la présence d'un effet Hall topologique fort, puis l'existence d'une direction de propagation des hélices magnétiques inattendue, et enfin la possible existence d'un arrangement magnétique au-delà de la température ambiante (la température de transition du FeGe volumique étant 278 K). Les propriétés des systèmes multicouches seront ensuite présentées. Je montrerai d'abord l'effet de la taille des nanostructures sur le renversement d'aimantation dans les multicouches [Au/Co/Pd]₁₀. Différentes caractérisations magnétiques seront ensuite exposées. Elles permettront de tenter de déterminer la contribution de la DMI dans la formation d'une texture magnétique en bulles de petite taille, très intéressante pour développer des mémoires de type *racetrack*. Enfin, je présenterai les premiers résultats obtenus sur la dépendance des paramètres magnétiques en fonction des épaisseurs des couches magnétiques et non magnétiques des multicouches [Pt/Co/W]₁₀.

Pour finir, je présenterai les conclusions tirées de ce travail de thèse, ainsi que les pistes à suivre dans le but d'approfondir les connaissances acquises au cours de ces trois ans.

Chapitre 1

Élaboration et caractérisation structurale

Sommaire

| | | |
|------------|---|-----------|
| I | État de l'art matériaux | 7 |
| | A. Systèmes volumiques non centrosymétriques | 8 |
| | B. Systèmes à interfaces non symétriques | 12 |
| II | Élaboration de couches minces magnétiques | 19 |
| | A. Techniques de dépôt | 19 |
| | 1) Épitaxie par jet moléculaire | 19 |
| | 2) Pulvérisation cathodique | 20 |
| | B. Techniques de caractérisations structurales | 22 |
| | 1) Diffraction de rayons X | 23 |
| | 2) Microscopie électronique en transmission | 25 |
| III | Développement d'un protocole de croissance pour les couches minces de FeGe B20 | 27 |
| | A. Croissance par pulvérisation à température ambiante | 28 |
| | B. Croissance par interdiffusion | 30 |
| | 1) Élaboration des couches minces Fe-Ge/Ge (111) | 30 |
| | 2) L'alliage Fe-Ge après recuit à basse température | 31 |
| | 3) L'alliage Fe-Ge après recuit à haute température | 34 |

| | |
|--|----|
| 4) L'alliage Fe-Ge après recuit à très haute température . . . | 37 |
| C. Codépôt à haute température | 37 |
| 1) Préparation du substrat de Si (111) | 37 |
| 2) Développement du procédé expérimental de la croissance par pulvérisation cathodique | 39 |
| 3) Protocole expérimental retenu | 44 |
| IV Détermination des multicouches [métal lourd 1/ferromagné- tique/métal lourd 2] _n | 51 |
| A. Choix des métaux lourds | 51 |
| B. Développement et caractérisation des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 55 |
| 1) Quelle épaisseur de cobalt ? | 55 |
| 2) Quelle couche tampon ? | 57 |
| 3) Caractérisation structurale des multicouches [Au/Co/Pd] ₁₀ | 59 |
| C. Développement et caractérisation des multicouches [Pt/Co/W] _n . | 63 |

I État de l'art matériaux

L'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DMI), nécessaire à la formation de skyrmions, apparaît uniquement dans les systèmes possédant une brisure de symétrie d'inversion. La théorie des groupes appliquée à la cristallographie nous dit que le nombre de systèmes pouvant héberger des skyrmions est limité. La DMI a initialement été prédite en 1958 pour décrire le ferromagnétisme faible observé par exemple dans l'hématite $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ [42]. La DMI a ensuite été prévue théoriquement dans les aimants chiraux tels que les alliages MnSi et FeGe. Elle est en effet responsable de l'instabilité magnétique de ces matériaux, conduisant alors à une structure magnétique en hélices [43, 44]. Une phase de vortex magnétiques, similaire à l'état mixte des supraconducteurs de type II, a ensuite été prédite par Bogdanov [45] dans des cristaux magnétiques non centrosymétriques et dans une gamme de champ précise. La présence de la DMI a également été démontrée au niveau des surfaces et interfaces de couches minces magnétiques [23, 46], modifiant alors l'arrangement magnétique dans les films minces et multicouches magnétiques. Dans le cas particulier des systèmes à anisotropie perpendiculaire, cette DMI d'interface peut donner naissance à de nouvelles structures magnétiques [47].

Des structures magnétiques similaires à des skyrmions peuvent également apparaître dans des systèmes sans DMI. En effet, des skyrmions d'un type différent ont été observés dans le $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x-0.05}\text{Sc}_x\text{Mg}_{0.05})_{12}\text{O}_{19}$ ($x = 0.16$), cristal centrosymétrique, en couche mince [48]. Dans ce cas, les skyrmions sont formés par la compétition entre l'interaction dipolaire et l'anisotropie magnétique hors du plan de la couche (contrôlée par le dopage en Sc). Dans ce système, les phases hélicoïdale et de cristal de skyrmions sont bien présentes, mais il n'y a pas de corrélation d'hélicité. Enfin, des simulations Monte Carlo ont démontré que la frustration magnétique, sans couplage spin-orbite ou interaction dipolaire, pourrait également être à l'origine de la formation de skyrmions [49, 50].

Nous nous intéresserons ici uniquement aux deux premiers systèmes où l'absence de symétrie d'inversion est à l'origine de la formation des skyrmions. Ces deux types de systèmes, volumiques et à interfaces, entraînent la formation de deux types de skyrmions (figure 1.1). Dans le skyrmion de Bloch, ou de volume, les spins tournent dans le plan perpendiculaire au rayon du skyrmion. Dans le skyrmion de Néel, ou d'interface, les spins tournent dans le plan radial du skyrmion. Nous allons désormais, dans les deux cas, détailler les systèmes à skyrmions existants et expliciter les raisons des choix des systèmes étudiés au cours de cette thèse.

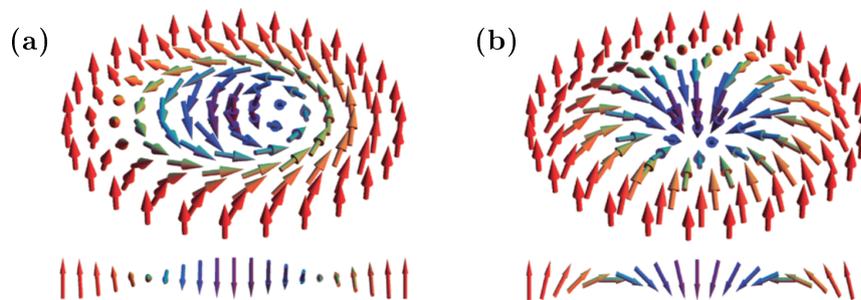


Fig. 1.1 – Représentation de skyrmions *a)* de Bloch et *b)* de Néel, et leur coupe radiale. (Images extraites de [51])

A. Systèmes volumiques non centrosymétriques

Les matériaux composés d'atomes à fort couplage spin-orbite et d'atomes magnétiques arrangés en une structure cristalline non centrosymétrique rassemblent les ingrédients nécessaires à la présence de la DMI. La DMI entraîne la rotation des spins les uns par rapport aux autres, donnant ainsi naissance à un arrangement magnétique en hélices. La direction de propagation de ces hélices est imposée par l'anisotropie magnétocristalline. Cette anisotropie étant relativement faible, l'application d'un champ magnétique peut changer la direction de propagation des hélices et les aligner dans sa direction. Lorsque le champ magnétique est plus intense, les spins composant les hélices tendent également à s'aligner dans la direction du champ, générant alors la phase conique. Enfin, dans une zone juste en dessous de la température de transition, un cristal de skyrmion peut apparaître dans le plan perpendiculaire au champ magnétique appliqué. Ces trois phases magnétiques ainsi que leur répartition en champ et en température sont représentées sur la figure 1.2.

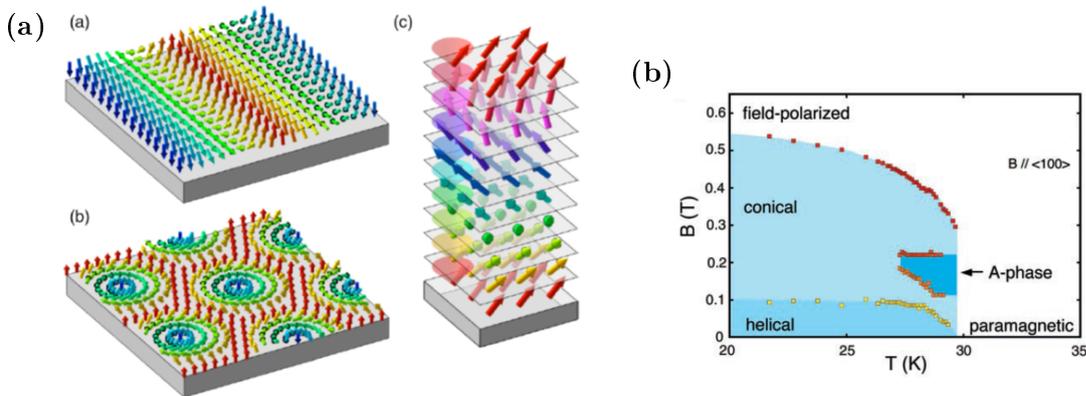


Fig. 1.2 – *a)* Représentation des différentes structures magnétiques présentes dans les aimants non centrosymétriques [52] ((a)=hélices, (b)=skyrmions, (c)=cônes) et *b)* un diagramme de phase (champ, température) typique de ces matériaux (ici du MnSi [18]).

Bien que les aimants hélicoïdaux soient connus et observés depuis des décennies, la phase skyrmionique (d'abord appelée phase A) a été détectée pour la première fois en 2009 au sein de l'aimant hélicoïdal MnSi par diffraction de neutrons aux petits angles (SANS pour *small angle neutron scattering*) [18, 20] (figure 1.3a) et par effet Hall topologique [19] (cette technique de détection sera décrite plus tard dans le manuscrit). Cette observation par diffraction de neutrons permet en réalité uniquement de confirmer la présence d'un arrangement magnétique en cristal triangulaire. Il faudra attendre l'année suivante pour observer un cristal de skyrmions dans l'espace réel, par microscopie électronique en transmission en mode Lorentz [53] (figure 1.3b).

Les alliages de type (Fe,Co,Mn)(Si,Ge), excepté le FeSi non magnétique et le CoSi diamagnétique, sont des aimants hélicoïdaux bien connus. En effet, le Si et le Ge apportent le couplage spin-orbite nécessaire, et leur structure cristalline est la phase cubique $P2_13$ ou B20 non centrosymétrique, représentée sur la figure 1.4. Les paramètres magnétiques de ces systèmes tels que le moment magnétique, la température critique et la période des hélices dépendent des éléments chimiques qui les composent. Ces paramètres sont des critères importants pour l'intégration à la technologie de l'information. L'utilisation de

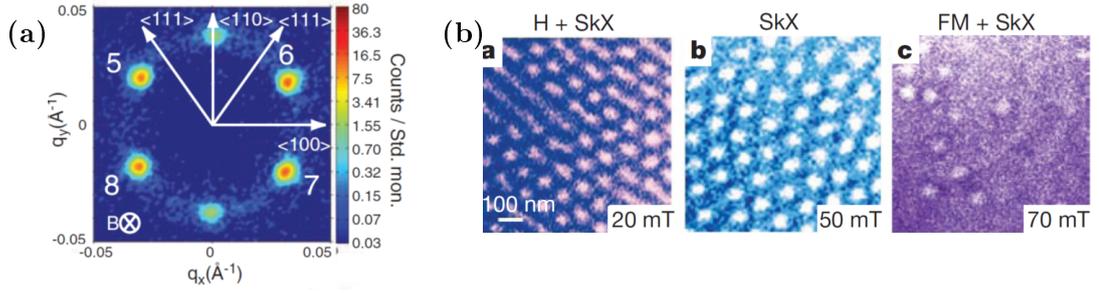


Fig. 1.3 – Observations expérimentales de la phase de skyrmions *a)* dans le $MnSi$ par diffraction de neutrons [18] et *b)* dans le $Fe_{0.5}Co_{0.5}Si$ par microscopie électronique [53] (H = hélices, SkX = cristal de skyrmions, FM = ferromagnétique).

ces matériaux offre la possibilité de substituer un des éléments par un autre homologue, et ainsi de faire varier continument les paramètres magnétiques tout en conservant les propriétés intéressantes de l'aimant hélicoïdal. De plus, pour certains de ces matériaux, un changement du sens de rotation des hélices magnétiques a été observé avec la modification de la composition chimique [54]. En effet, la chiralité des hélices est déterminée par le signe de la DMI, lui-même fonction de l'arrangement atomique au sein du cristal. Il est alors possible de contrôler le sens de rotation des hélices, en plus de leur période. Les alliages $(Fe,Co,Mn)(Si,Ge)$ possèdent des propriétés électriques très différentes les uns par rapport aux autres. Cela indique qu'un cristal de skyrmions peut être formé dans tout matériau magnétique dont la structure cristalline est non centrosymétrique. Cela a été confirmé par l'observation de skyrmions dans le Cu_2OSeO_3 possédant une structure cristalline appartenant au même groupe d'espace $P2_13$ [55]. Le Cu_2OSeO_3 est un isolant électrique multiferroïque. Ceci offre la formidable opportunité de contrôler la formation et le mouvement de skyrmions uniquement par l'application d'un champ électrique, et donc avec un coût énergétique très faible. Cependant, avec une température de transition de 58 K, il n'est pas un candidat réaliste pour des applications en technologie de l'information. Très récemment, des skyrmions ont été observés à température ambiante dans un nouveau matériau chiral de groupe d'espace $P4_132$. L'alliage $Co-Zn-Mn$ [56] offre la possibilité de faire varier ses propriétés électriques et magnétiques en fonction de sa composition atomique. Il permet d'atteindre des températures de transition magnétique variant entre 150 et 500 K, avec une période d'hélices de l'ordre de 100 nm. Ce tout nouveau système semble donc très prometteur pour des applications technologiques. Une autre curiosité a été découverte récemment. Alors que des skyrmions de Bloch sont attendus dans les systèmes volumiques, le GaV_4S_8 , de structure non centrosymétrique, présente une phase de skyrmions de Néel [51]. En effet, l'arrangement atomique de ce matériau entraîne la formation de cycloïdes (pour lesquelles les spins sont dans un plan auquel appartient le vecteur de propagation) plutôt que d'hélices magnétiques (pour lesquelles les spins sont perpendiculaires à la direction de propagation de l'hélice). La température de transition de ce matériau est très faible, mais permet d'ouvrir la porte à de tout nouveaux matériaux présentant des propriétés magnétiques exotiques. Le tableau 1.1 répertorie les propriétés magnétiques de certains matériaux dans lesquels des skyrmions ont été observés.

a. SANS = diffraction de neutrons, MET-L = microscopie électronique en transmission en mode Lorentz, EHT = effet Hall topologique, MFM = microscopie à force magnétique

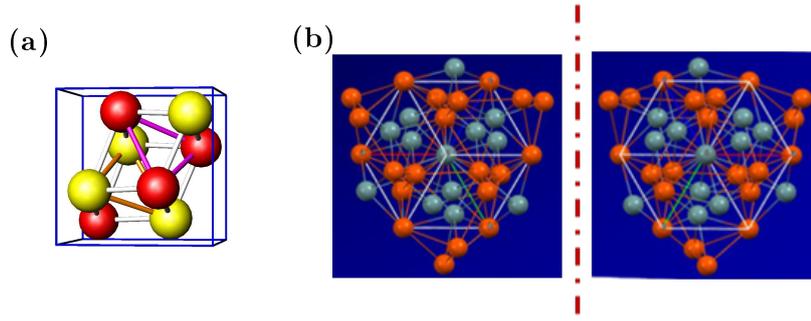


Fig. 1.4 – *a)* Maille conventionnelle de la structure B20. *b)* Vues selon les directions $\langle 111 \rangle$ et $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$ du FeGe B20 avec les atomes de Fe en orange et de Ge en bleu (image réalisée à l'aide du logiciel Mercury). Cette image met en évidence la chiralité de la structure B20, et la non-équivalence des directions $\langle 111 \rangle$ et $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$.

| Matériau | T_C (K) | λ_{sky} (nm) | M_S | α | x_c | techniques exp. ^a [ref] |
|---------------------------------------|-----------|----------------------|-----------------------------|----------|-------|------------------------------------|
| MnSi | 30 | 18 | $0.4 \mu_B/\text{Mn}$ | +1 | | SANS [18] |
| FeGe | 279 | 70 | $1 \mu_B/\text{Fe}$ | -1 | | MET-L [57] |
| MnGe | 170 | 3 | $2.3 \mu_B/\text{Mn}$ | +1 | | EHT, SANS [58, 59] |
| $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ | < 50 | 40-230 | $0.25 \mu_B/\text{f.u.}$ | -1 | | SANS [60] |
| $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ | 7-29 | 10-18 | $< 0.4 \mu_B/\text{f.u.}$ | +1/-1 | 0.13 | SANS [61] |
| $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$ | 100-279 | 3-220 | $< 2.3 \mu_B/\text{f.u.}$ | +1/-1 | 0.75 | SANS [62], MET-L [63] |
| $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ | 7-29 | 10-19 | $< 0.4 \mu_B/\text{f.u.}$ | +1/ | 0.08 | susceptibilité AC [64] |
| Cu_2OSeO_3 | 58 | 60 | $0.5 \mu_B/\text{Cu}^{2+}$ | +1 | | MET-L [55], SANS [65] |
| $\text{Co}_x\text{Zn}_y\text{Mn}_z$ | 150-500 | 120-200 | $\sim 0.85 \mu_B/\text{Co}$ | -1 | | MET-L, SANS [56] |
| GaV_4S_8 | 13 | 17 | $0.75 \mu_B/\text{f.u.}$ | Néel | | MFM, SANS [51] |

Tab. 1.1 – Liste des matériaux de structure cristalline non centrosymétrique dans lesquels des skyrmions ont été détectés, et de certains de leurs paramètres. T_C est la température de transition, λ_{sky} est la période du réseau de skyrmions, M_S est l'aimantation à saturation, μ_B est le magnéton de Bohr, f.u. signifie formula unit, α est le signe de la DMI (responsable de la rotation horaire ou antihoraire des spins), et x_c est la proportion critique au-delà de laquelle le signe de la DMI change.

Il existe alors un nombre important de matériaux pouvant accueillir des skyrmions, et les dernières observations laissent à penser que quantité d'autres attendent d'être découverts. Cela promet une possibilité d'optimisation des différents paramètres magnétiques par simple manipulation de la composition chimique, et la création d'une nouvelle brique élémentaire pour les technologies de l'information.

Cependant, quel que soit le matériau utilisé, la phase de skyrmions est restreinte à une petite zone en température ($\Delta T < 10$ K) et en champ magnétique, ce qui réduit fortement les possibilités d'applications. Ce problème a été en partie réglé par l'observation de deux phénomènes. Le premier est la stabilisation d'un cristal de skyrmion métastable formé par refroidissement sous champ [60]. Cela permet alors d'étendre la gamme de température de la zone de skyrmions jusqu'à 0 K. D'autre part, il a été montré que des contraintes appliquées au cristal peuvent entraîner une variation des paramètres de l'arrangement magnétique. En effet, une pression isotrope modifie sensiblement la température de transition T_C (par exemple $\frac{dT_C}{dP} = 0.27$ K.kbar⁻¹ pour le Cu₂OSeO₃ [66] et $\frac{dT_C}{dP} = -0.8$ K.kbar⁻¹ pour le MnSi [67]). Dans les deux cas la plage de température de stabilité des skyrmions est étendue. Plus spécifiquement, il a été démontré qu'une tension uniaxiale relativement faible perpendiculaire au plan du cristal de skyrmions permet d'étendre considérablement la zone de stabilité des skyrmions par couplage magnétoélastique. Pour expliquer ce phénomène Butenko *et al.* [68] ajoutent un terme d'anisotropie uniaxiale dans la théorie phénoménologique développée par Dzyaloshinskii et Bak *et al.* [43, 44] :

$$w = A(\nabla\mathbf{M})^2 - \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} + D\mathbf{M} \cdot (\nabla \times \mathbf{M}) + w_a - KM_z^2 \quad (1.1)$$

où A est la constante d'échange, le second terme est l'énergie de Zeeman, le troisième est l'énergie chirale due à la DMI, w_a est le terme d'anisotropie magnétocristalline (très faible), et le dernier terme est l'anisotropie uniaxiale magnétoélastique. Butenko *et al.* montrent alors que la valeur d'anisotropie nécessaire à la suppression de la phase conique, et donc à la stabilisation du cristal de skyrmions sur une grande gamme de champ magnétique et de température ($K = 17$ kJ/m³), correspond à une elongation $u_{zz} = 0.0024$ et une contrainte en tension de l'ordre de 680 MPa pour le MnSi. Ce phénomène a été confirmé expérimentalement par diffraction de neutrons pour le MnSi [69], où la plage de stabilité des skyrmions en température est multipliée par 3 pour une contrainte planaire de 1 kbar (= 100 MPa). Cela ouvre la porte à la manipulation mécanique des skyrmions, par exemple la possibilité de créer ou d'annihiler un skyrmion isolé par simple pression d'une pointe de microscopie à force atomique [70]. Cela permet également d'expliquer les variations dans les diagrammes de phase des échantillons amincis (par exemple pour l'observation en microscopie électronique en transmission) et des mêmes matériaux en volume [53, 57, 71, 55], l'amincissement (jusqu'à environ 100 nm) donnant naissance à une anisotropie surfacique uniaxiale. Un moyen de créer cette anisotropie uniaxiale, de façon plus ou moins contrôlable, est l'épitaxie des matériaux chiraux. En fonction du désaccord de maille avec le substrat, le cristal magnétique subit une contrainte latérale, et donc une déformation perpendiculaire à la surface. L'évolution drastique de la stabilité des skyrmions dans ces matériaux épitaxiés a été clairement observée pour le Fe_{1-x}Co_xSi sur Si (111) [72], le MnSi sur Si (111) [73] (voir figure 1.5) et le FeGe sur Si (111) [74] et sur MgO (001) [75]. Elle est parfois même accompagnée d'une augmentation de la température de transition pouvant aller jusqu'à 20 K [72, 75], et d'une diminution du champ magnétique de transition jusqu'à 0 mT [76].

Ainsi, les aimants chiraux présentent une phase de skyrmions magnétiques de petite taille très stables sous champ. Au début de ma thèse, l'alliage FeGe était l'aimant hélicoïdal qui avait la température de transition magnétique la plus élevée (278 K). De

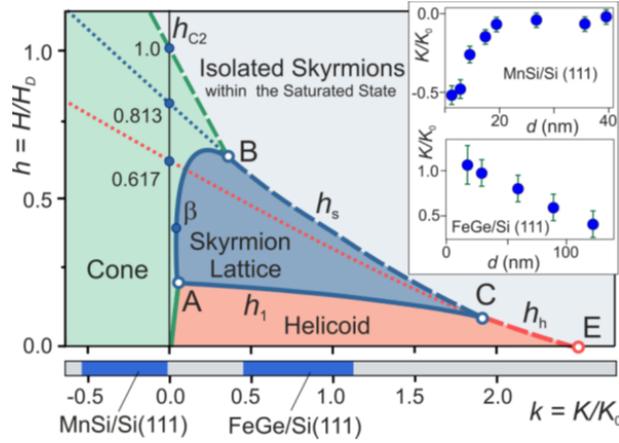


Fig. 1.5 – Diagramme de phases basé sur le modèle décrit par l'équation (1.1) [73]. En insert est représentée l'anisotropie uniaxiale en fonction de l'épaisseur de matériau déposé dans les cas du FeGe et du MnSi. On remarque que l'anisotropie est de signe opposé dans ces deux cas, et qu'il existe une épaisseur critique au-delà de laquelle elle s'annule (~ 150 nm pour le FeGe et 20 nm pour le MnSi).

plus, la zone de stabilité des skyrmions peut être étendue (champ magnétique nécessaire à l'obtention des skyrmions réduit et température de Curie augmentée) par l'application d'une contrainte plane, en particulier par épitaxie. D'autre part, la possibilité de créer des skyrmions isolés dans ces matériaux chiraux en fait de très bons candidats pour les technologies de l'information. Ceci désigne directement l'alliage FeGe comme matériau prometteur. Les couches minces épitaxiées de FeGe B20 seront alors le premier sujet d'étude de cette thèse.

B. Systèmes à interfaces non symétriques

Fert et Crépieux *et al.* ont prévu que la DMI pourrait également prendre place à l'interface entre un matériau ferromagnétique et un métal à fort couplage spin-orbite [23, 46]. Cette prédiction a été confirmée par l'observation de spirales magnétiques chirales dans une monocouche de Mn sur W (110) [77]. La chiralité et la périodicité de ces spirales ne pouvant être créées que par l'intervention de la DMI, elles sont la preuve de son existence dans un système d'interfaces/surfaces non symétriques. Cette DMI d'interface pourrait être à l'origine de la formation de skyrmions dans ces systèmes [47]. En effet, les skyrmions d'interface ont été observés pour la première fois en 2011 par SP-STM (*spin-polarized scanning tunneling microscopy*) dans une monocouche de Fe posée sur Ir (111) [21]. Cette découverte offre un tout nouveau champ de recherche et un éventail de possibilités extraordinaire pour la formation de skyrmions magnétiques.

Mais la DMI d'interface ne suffit pas à la formation de skyrmions, en particulier de skyrmions isolés recherchés pour le transport de l'information. La stabilité des skyrmions dépend du rapport entre les différentes interactions magnétiques (en particulier l'interaction d'échange, l'anisotropie perpendiculaire, et la DMI). En effet, l'énergie d'une paroi de domaine en présence de DMI devient $\sigma_{DW} = 4\sqrt{AK} - \pi D$, avec A la constante d'échange,

K la constante d'anisotropie effective et D la constante de DMI. On remarque alors qu'il existe une valeur critique de D au-delà de laquelle l'énergie des parois est négative et une phase d'hélices ou de skyrmions devient stable. Cette condition n'est cependant pas suffisante à la création d'un cristal de skyrmions, et elle n'est pas nécessaire à l'équilibre d'un skyrmion isolé [78]. Une DMI trop importante aura tendance à stabiliser une texture magnétique périodique de cycloïdes. Il est possible d'obtenir des skyrmions isolés métastables dans une couche mince dont la DMI est inférieure à la valeur critique par la création d'une perturbation telle que l'application d'un champ magnétique (figure 1.6). Expérimentalement, la première création/annihilation de skyrmion isolé a été observée dans le système FePd/Ir (111) par l'injection d'un courant local par SP-STM [29]. La nanostructuration des couches minces possédant une DMI d'interface permet également de stabiliser des skyrmions isolés [79, 15]. Ce procédé est grandement utilisé aujourd'hui puisque parfaitement adapté au développement de mémoires *racetrack* [13]. Il convient d'autre part de mettre l'accent sur la différence entre les skyrmions et les "simples" bulles magnétiques, plus larges, stabilisées par le champ démagnétisant en l'absence de DMI, parfois également appelés skyrmions aujourd'hui.

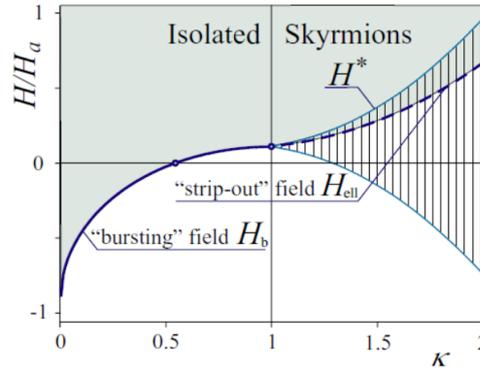


Fig. 1.6 – Diagramme de phase de l'existence de skyrmions isolés en fonction de $\kappa = \frac{\pi D}{4\sqrt{AK}}$ et H/H_a , avec H_a le champ d'anisotropie [78]. Les skyrmions isolés sont stables pour $\kappa < 1$, ou sous application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan de la couche $H > 0$. Dans la zone hachurée ($\kappa > 1$), l'état d'équilibre est une phase magnétique périodique (cycloïdes ou cristal de skyrmions).

La stabilisation de parois de Néel dans des systèmes où des parois de Bloch sont attendues rend la DMI d'interface très attractive. La DMI agit comme un champ effectif perpendiculaire à la paroi et dans le plan de l'interface, stabilisant alors des parois de Néel chirales. Un tel phénomène a été observé dans un système composé de deux monocouches de Fe sur W (110) [80], où des mesures SP-STM ont montré la présence de parois de Néel dont les spins tournent dans le même sens. Des simulations micromagnétiques ont prouvé l'implication de la DMI à l'interface entre le Fe et le W dans l'apparition de ce phénomène, et ont permis de quantifier la valeur de la constante de DMI. Dans ce système épitaxié et de symétrie 2 (plan (110) du W), la DMI est anisotrope et il existe en réalité deux valeurs pour la quantifier, dépendant de la direction cristallographique considérée. La stabilisation de parois de Néel chirales est particulièrement intéressante car elle offre la possibilité d'accéder à des vitesses de parois plus grandes qu'en l'absence de DMI [28].

Dans le cas d'un déplacement par application d'un champ magnétique, la vitesse de la paroi augmente d'abord de façon linéaire avec l'amplitude du champ appliqué. Elle atteint ensuite un maximum avant de chuter considérablement. Cela s'appelle le seuil de Walker (voir figure 1.7a). Le seuil de Walker correspond à la transition de la nature de la paroi par précession de l'aimantation dans celle-ci. La DMI d'interface permettant de stabiliser les parois de Néel, cette transition est décalée, voire supprimée. Le seuil de Walker est alors repoussé et le régime stationnaire étendu. Dans des matériaux sans DMI, il n'est pas rare que le seuil de Walker soit en dessous du champ magnétique de dépiégeage. Le décalage du seuil de Walker permet alors d'accéder au régime stationnaire dans lequel le déplacement de parois magnétiques est très efficace. Des calculs et des simulations micromagnétiques ont montré une évolution presque linéaire du seuil de Walker avec la valeur de la constante de DMI (figure 1.7b).

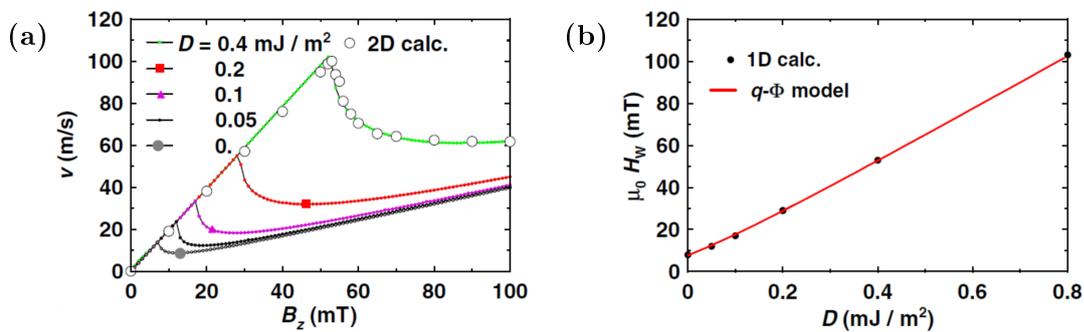


Fig. 1.7 – *a)* Graphique représentant la vitesse en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la couche. La vitesse augmente d'abord de façon linéaire et rapide avant de chuter brusquement. Cette limite s'appelle le seuil de Walker. *b)* Graphique représentant l'augmentation du champ de Walker avec la valeur de la DMI. [28]

Pour l'intégration à des dispositifs technologiques, il est plus adapté de déplacer les parois par l'application d'un courant électrique plutôt que d'un champ magnétique. Le transfert de moment magnétique (STT pour *spin transfer torque*) d'un courant de spins à l'aimantation locale s'est révélé très efficace pour déplacer des parois magnétiques [81, 82]. Une façon de créer un pur courant de spins est l'utilisation de l'effet Hall de spins. Un courant de spins $\mathbf{j}_s = \mathbf{j}_\uparrow - \mathbf{j}_\downarrow$ est dit pur quand le courant de charge $\mathbf{j}_c = \mathbf{j}_\uparrow + \mathbf{j}_\downarrow$ est nul (\mathbf{j}_\uparrow et \mathbf{j}_\downarrow sont les courants d'électrons de spin up et down respectivement). L'utilisation d'un pur courant de spins permet d'augmenter l'efficacité du transfert de moment magnétique. L'effet Hall de spins (SHE) est la conversion d'un courant de charges en un pur courant de spins suivant la loi $\mathbf{j}_s = \theta_H \hat{\mathbf{s}} \times \mathbf{j}_c$ avec $\hat{\mathbf{s}}$ le vecteur unitaire du moment magnétique de l'électron et θ_H l'angle de Hall de spin (voir figure 1.8a). Ce phénomène se produit dans les matériaux à fort couplage spin-orbite tels que le Pt ou le W. Dans la configuration où le courant de charges injecté est parallèle au nanofil et donc au déplacement de la paroi, le courant de spins créé est tel qu'il permet uniquement le déplacement des parois de Néel [83]. En effet, le courant de spins créé par SHE, perpendiculaire au plan de la couche, interagit avec l'aimantation de la couche magnétique, créant un couple dit de Slonczewski [5], dont le champ effectif s'exprime :

$$\mathbf{H}_{\text{SL}} = \frac{\hbar\theta_H}{2eM_S t_F} (\hat{\mathbf{m}} \times (\hat{\mathbf{z}} \times \mathbf{j}_c)) \quad (1.2)$$

avec $\hat{\mathbf{m}}$ le vecteur unitaire d'aimantation, $\hat{\mathbf{z}}$ le vecteur unitaire perpendiculaire au plan de la couche, M_S l'aimantation à saturation et t_F l'épaisseur de la couche magnétique (voir figure 1.8b). La DMI d'interface présente alors à nouveau tout son intérêt ici. De plus, les parois de Néel créées par la DMI d'interface étant chirales, l'application d'un courant de spins entraîne un mouvement dans le même sens des différentes parois présentes dans le nanofil, rendant alors possible la création de *racetrack* basée sur ce type de systèmes. Cela permet également de déplacer un skyrmion de Néel sans le déformer et d'observer ce fameux comportement de pseudo-particule. Des expériences ont montré l'efficacité du déplacement par SHE-STT dans des systèmes présentant une forte DMI d'interface tels que le Ta/CoFeB/MgO et Pt/CoFeB/MgO [84]. De plus, connaissant le signe de θ_H du métal lourd, il est possible de déduire la chiralité des parois, et donc le signe de la DMI, en fonction de la direction de propagation des parois.

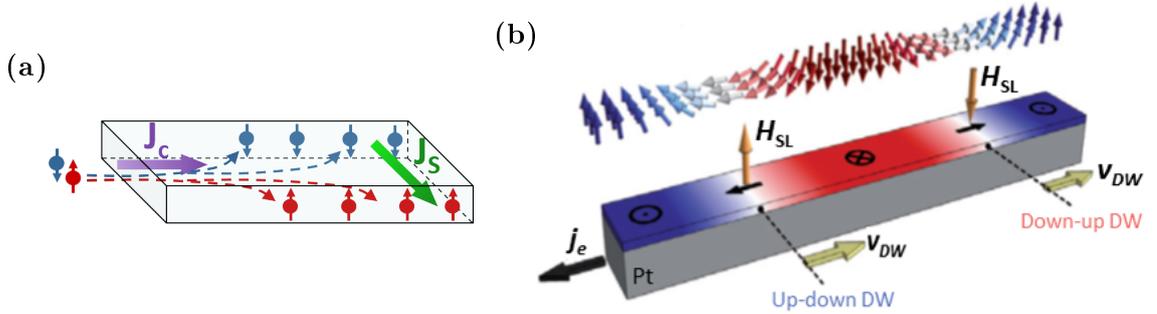


Fig. 1.8 – *a)* Schéma de principe de la conversion d'un courant de charges en un pur courant de spins par SHE. *b)* Schéma de parois de Néel chirales dans le système Pt/CoFe/MgO. Le champ effectif \mathbf{H}_{SL} créé par SHE est représenté au niveau des parois, entraînant un mouvement des deux parois dans la même direction. [84]

Ainsi, la DMI d'interface présente un intérêt très fort pour la formation et la manipulation de skyrmions. C'est pourquoi les recherches sur les systèmes présentant une DMI d'interface ont considérablement augmenté ces dernières années. Jusqu'à présent, des skyrmions ont été détectés dans trois types de systèmes : ferromagnétique (FM)/métal lourd (ML) [21, 85], ML/FM/oxyde [86, 26, 27], ML1/FM/ML2 [27, 87], l'interface FM/ML étant à l'origine de la DMI d'interface créée par couplage spin-orbite. Ce type de système, contrairement aux systèmes volumiques, offre la possibilité de contrôler les différentes interactions magnétiques par la gestion des interfaces. En particulier, la valeur et le signe de la DMI dépendent fortement du couple de matériaux utilisés. Par exemple, dans des multicouches $[\text{Ni}/\text{Co}]_n$ à aimantation perpendiculaire, déposées sur substrat de Pt, les parois magnétiques sont des parois de Néel droite. Par l'intercalation d'une fine couche d'Ir, les parois magnétiques transitent de Néel droite à Néel gauche, en passant par des parois de Bloch, en fonction de l'épaisseur d'Ir [88]. Ce phénomène a également été observé et quantifié sur des tricouches $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ir}(t_{\text{Ir}})/\text{Pt}]_n$ [89], avec t_{Ir} variant entre 0 et 3 nm. Des calculs DFT ont été menés afin de prévoir la variation de contribution des différentes interactions magnétiques, et donc la stabilité de skyrmions, en fonction des matériaux utilisés [90]. Cela permet alors de guider les choix des expérimentateurs dans

l'élaboration d'échantillons avec une forte DMI. Il est également possible de modifier la couche magnétique plutôt que le métal à fort couplage spin-orbite. En effet, la valeur de la DMI ne dépend pas seulement du métal lourd mais du couple de matériaux utilisés. Ainsi, le système $[\text{Ir}/\text{Fe}/\text{Co}/\text{Pt}]_n$ possède une DMI totale plus importante que la multicouche $[\text{Ir}/\text{Co}/\text{Pt}]_n$ [91]. L'anisotropie du système dépend également fortement des matériaux utilisés, ainsi que de leurs épaisseurs et de la qualité des interfaces. Il est alors possible d'ajuster les paramètres et de stabiliser une phase de skyrmions en modifiant simplement les interfaces du système. Cependant, les premiers skyrmions observés dans des bicouches ou tricouches sont stables uniquement à très basses températures. La répétition de ces tricouches entraîne le couplage de skyrmions à travers les différentes couches de métaux non magnétiques, créant ainsi une texture magnétique colonnaire stabilisée à température ambiante par leur grand volume magnétique [27, 87]. Le nombre de répétitions permet également d'ajuster certains paramètres tels que l'anisotropie magnétique.

Le tableau 1.2 présente une liste non exhaustive des systèmes présentant une DMI d'interface dans lesquels des skyrmions ont été observés, ainsi que certains de leurs paramètres. On remarque que les techniques d'observation utilisées pour ce type de systèmes sont différentes des techniques utilisées pour les systèmes volumiques. En effet, la microscopie électronique en transmission, très efficace dans le cas des aimants hélicoïdaux, ne permet pas d'observer simplement les skyrmions de Néel (on expliquera pourquoi dans le chapitre suivant). Le SP-STM permet d'imager l'aimantation à la surface de la couche avec une résolution atomique, mais c'est une technique extrêmement contraignante et donc rare. Le STXM (*scanning transmission X-ray microscopy*) permet d'imager l'aimantation perpendiculaire au plan de l'échantillon, et ne permet donc pas de caractériser le type de paroi. Le SPLEEM (*spin polarized low-energy electron microscopy*) et le XMCD-PEEM (*photoemission electron microscopy combined with X-ray magnetic circular dichroism*) sont des techniques de microscopie qui autorisent l'identification du type de paroi magnétique. La microscopie à effet Kerr magnéto-optique (MOKE) ne permet pas d'identifier le type de parois, mais peut être utilisée pour observer l'asymétrie d'expansion d'un domaine magnétique, et ainsi déterminer la valeur de la DMI. La spectroscopie de Brillouin (BLS) permet également de mesurer la valeur de la DMI du système.

| Matériau | T_C (K) | λ_{sky} (nm) | D_{DMI} | techniques exp. [ref] |
|--|-----------------|----------------------|-----------|-----------------------|
| Fe/Ir (111) | 11 | 1 | -4 meV/Fe | SP-STM [21] |
| Pt/Co/MgO | RT ^a | 70-190 | 2.2 pJ/m | XMCD-PEEM, BLS [86] |
| $[\text{Ir}/\text{Co}/\text{Pt}]_{10}$ | RT | 40-90 | 1.1 pJ/m | STXM [87] |
| Fe/Ni/Cu/Ni/Cu | RT | 400 | | SPLEEM [85] |
| Ta/CoFeB/TaOx | RT | 700-2000 | | MOKE [26] |
| $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ta}]_{15}$ | RT | 400-500 | 1.2 pJ/m | STXM [27] |
| $[\text{Pt}/\text{CoFeB}/\text{MgO}]_{15}$ | RT | 400-500 | | STXM [27] |

Tab. 1.2 – Liste des systèmes à interfaces dans lesquels des skyrmions ont été observés, et de certains de leurs paramètres. T_C est la température de transition magnétique, λ_{sky} est la taille des skyrmions, D_{DMI} est la constante de DMI.

Ainsi, les systèmes à interfaces non symétriques permettent la stabilisation de skyrmions ou parois de Néel, qui peuvent ensuite être déplacés par l'application d'un courant de spins perpendiculaire à la couche créé par SHE. La DMI d'interface permet également de repousser le seuil de Walker, autorisant des vitesses de déplacement de parois importantes par l'application d'un courant jusqu'à 10^6 fois moins intense que pour des parois magnétiques classiques. En outre, ces systèmes offrent une grande versatilité permettant d'ajuster au mieux l'intensité des différentes interactions et ainsi d'améliorer la stabilité des skyrmions. En particulier, les systèmes du type ML1/FM/ML2 offrent la possibilité de régler deux constantes de DMI. Ainsi, en choisissant des couples ML/FM avec des DMI de signe opposé, la valeur totale de la DMI du système peut être considérablement augmentée (voir figure 1.9). Enfin, la répétition de tricouches permet de stabiliser les textures magnétiques à température ambiante, nécessaire pour des applications technologiques. Les multicouches de types $[ML1/FM/ML2]_n$ seront alors le deuxième sujet d'étude de cette thèse. Le choix des différents matériaux (ML1, FM, ML2) ainsi que des épaisseurs des couches sera explicité plus loin dans le manuscrit.

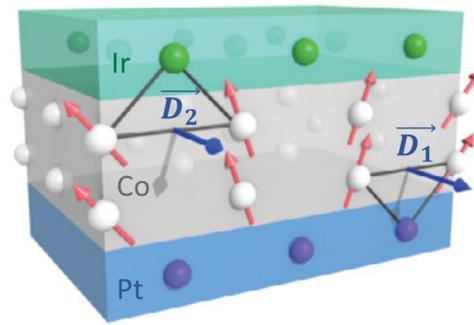


Fig. 1.9 – Schéma d'une tricouche $[Pt/Co/Ir]$ [87]. Les flèches roses représentent les spins des atomes de Co, inclinés sous l'effet de la DMI. Les flèches bleues représentent les vecteurs des DMI créés aux deux interfaces. Les couples Pt/Co et Ir/Co ayant des DMI de signe opposé, leurs contributions s'ajoutent et la DMI totale est forte.

a. RT = room temperature = température ambiante

II Élaboration de couches minces magnétiques

La croissance des couches minces est une étape cruciale du processus de création de textures magnétiques. Il a été démontré, théoriquement et expérimentalement, que la qualité des interfaces et/ou la structure cristalline a une influence considérable sur les propriétés magnétiques [92]. Par exemple, dans le cas des multicouches $[\text{Au}/\text{Co}]_n$, plus les interfaces sont abruptes, plus l'anisotropie perpendiculaire est forte. Nous apporterons donc une attention particulière à l'élaboration de nos échantillons et à leur caractérisation structurale. Ainsi, après avoir présenté rapidement les deux techniques de croissance utilisées au cours de cette thèse, les techniques de caractérisation seront expliquées succinctement. Le développement du protocole de croissance de FeGe sera alors exposé. Puis les différents paramètres des multicouches ML1/FM/ML2 seront déterminés.

A. Techniques de dépôt

Il existe de nombreuses techniques de dépôt en couche mince, chacune ayant ses particularités. Au cours de cette thèse, les techniques de dépôt utilisées sont l'épitaxie par jet moléculaire et la pulvérisation cathodique. La première a pour avantage de permettre des dépôts à vitesse lente et d'obtenir, avec un substrat adapté, des couches minces de très bonne qualité cristalline, voire monocristallines. La seconde offre la possibilité de réaliser des dépôts rapides, et donc épais, mais aussi de contrôler l'énergie cinétique des atomes déposés. La croissance par pulvérisation cathodique est d'autre part nettement moins contraignante que par épitaxie par jet moléculaire. Dans les deux cas, la vitesse de dépôt est connue et contrôlée à l'aide d'une balance à quartz.

1) Épitaxie par jet moléculaire

L'épitaxie par jet moléculaire (EJM) est une technique de dépôt qui permet la croissance de couches minces monocristallines d'une grande pureté. Elle est par exemple largement utilisée pour la croissance de semi-conducteurs, dont la qualité cristalline et la maîtrise des taux d'impuretés sont primordiales pour obtenir des propriétés physiques spécifiques telles que de fortes mobilités électroniques, des transitions optiques radiatives contrôlées ou la formation de gaz électroniques bidimensionnels aux interfaces. L'EJM est également utilisée pour des dépôts d'oxydes ou de métaux.

Cette technique consiste en l'évaporation d'un ou plusieurs matériaux, formant alors un jet moléculaire en direction du substrat. L'évaporation peut se faire par chauffage par effet Joule d'un creuset réfractaire contenant le matériau cible, ou par bombardement électronique de la cible placée dans un creuset. L'une ou l'autre des techniques sera plus ou moins bien adaptée en fonction des matériaux. Par exemple, l'évaporation des matériaux les plus réfractaires requiert le bombardement électronique.

Le bâti utilisé au cours de cette thèse permet d'obtenir une pression de l'ordre de 10^{-10} mbar, idéale pour obtenir un dépôt d'une grande pureté, sans pollution d'oxygène ou de carbone. Il est équipé de plusieurs évaporateurs permettant des codépôts et ainsi la croissance d'alliage. La présence de balances à quartz permet de contrôler la vitesse de dépôt des matériaux, et donc la composition atomique de l'alliage déposé. Les taux de dépôt peuvent

être inférieurs à 0.5 \AA/s , ce qui permet la croissance de couches minces monocristallines de grande qualité. Ce bâti est également pourvu d'un four permettant de chauffer l'échantillon avant, pendant et/ou après le dépôt. Ce four, alliant chauffage résistif et bombardement électronique, permet d'atteindre des températures allant jusqu'à $1100 \text{ }^\circ\text{C}$. Le bâti est également équipé d'un diffracteur d'électrons, désigné sous l'appellation RHEED (pour *reflection high energy electron diffraction*), permettant de vérifier l'état de surface du substrat avant dépôt, mais également de contrôler *in situ* la qualité du dépôt au cours de la croissance. Le RHEED est constitué d'un canon à électrons émettant un faisceau d'électrons de haute énergie (20 kV) en incidence rasante sur l'échantillon. Le faisceau d'électrons est alors diffracté par la surface de l'échantillon et la figure de diffraction est observée sur un écran fluorescent situé à l'opposé du canon. Cette figure de diffraction permet de conclure quant à la qualité cristalline du dépôt, mais également d'identifier les phases cristallines en présence. Elle permet en particulier d'observer la reconstruction 7×7 du Si (111) (figure 1.10) caractéristique d'une surface de bonne qualité et prête à recevoir le dépôt.

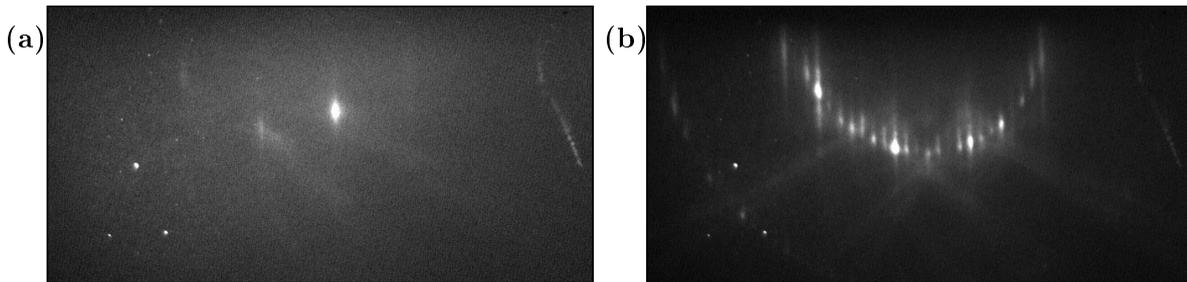


Fig. 1.10 – *Figures RHEED a) du Si (111) avant traitement thermique et b) de la reconstruction 7×7 après traitement thermique.*

L'EJM est donc une technique qui permet de contrôler très précisément la qualité d'une couche mince. Cependant, le vide poussé nécessaire à l'obtention de cette qualité entraîne des contraintes importantes au niveau de la mise en œuvre. En effet, il requiert l'utilisation de matériaux qui dégazent peu, tels que des aciers inoxydables spéciaux, et un système de manipulation et de sas d'introduction des échantillons qui, dans le cas du bâti utilisé au cours de cette thèse, limite les remises à l'air de la chambre aux seules périodes de maintenance. Il n'était donc pas possible avec cet outil d'atteindre la versatilité nécessaire aux essais de différents matériaux pour l'élaboration des multicouches magnétiques par exemple. C'est pourquoi la pulvérisation cathodique a été une technique très utilisée au cours de cette thèse. En effet, le bâti de pulvérisation cathodique utilisé ici offre, aux dépens d'un vide très poussé, la possibilité de changer de matériau entre chaque dépôt.

2) Pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique permet d'effectuer des dépôts rapides, autorisant la croissance de couches minces de plusieurs microns d'épaisseur. Cette technique est moins contraignante que l'EJM, mais ne permet pas d'obtenir les mêmes propriétés cristallines. En effet, la pression de base de notre bâti est de l'ordre de 10^{-7} mbar , soit trois ordres de

grandeur au-dessus de la pression du bâti d'EJM. Les dépôts par pulvérisation sont donc contaminés par l'oxygène et le carbone résiduel de l'atmosphère.

Cette technique de dépôt consiste à bombarder avec des ions une cible du matériau souhaité dont les atomes se dispersent alors dans tout le bâti, et en particulier sur le substrat. Le principe est le suivant : Une atmosphère du gaz souhaité et à une pression permettant la formation d'un plasma ($\sim 10^{-3}$ mbar) est établie dans l'enceinte. Le gaz utilisé est un gaz neutre (majoritairement Ar, mais parfois Kr ou Xe) seul ou mélangé avec d'autres gaz tels que l'O₂, le N₂ ou le H₂S. On parle alors de pulvérisation réactive. Cela permet de réaliser des couches minces d'un composé incorporant l'un de ces éléments et pour lequel la pulvérisation à partir d'une cible de la bonne composition de fonctionne pas. Par application d'une tension de quelques 100 V entre la cible et le reste de l'enceinte, un plasma est créé. Les ions de ce plasma, Ar⁺ dans notre cas, se déplacent vers la cible avec une énergie contrôlée par la tension appliquée. Les ions entrent alors en collision avec le matériau à pulvériser et arrachent des atomes qui se répandent dans toute l'enceinte. L'ajout d'un magnétron (aimant permanent placé sous la cible) permet de concentrer le plasma au voisinage de la cible, améliorant la stabilité du plasma à basse pression et augmentant l'efficacité de collisions. Un schéma de principe du fonctionnement de la pulvérisation cathodique avec effet magnétron est présenté figure 1.11.

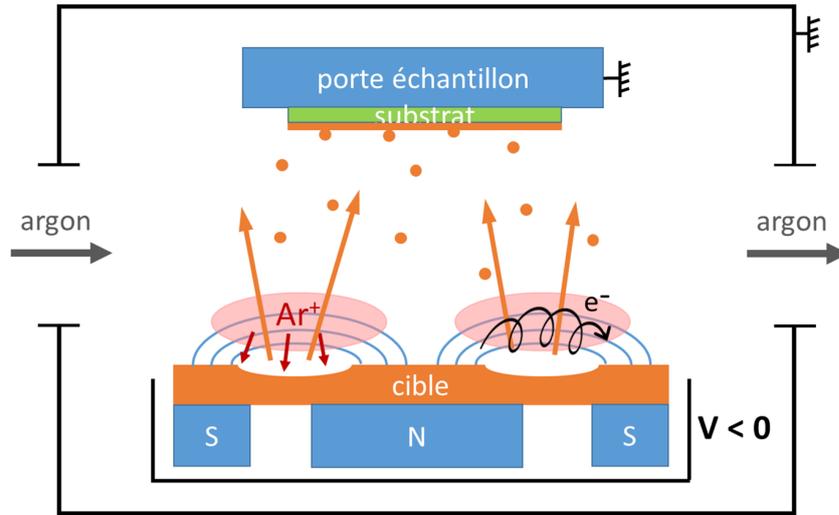


Fig. 1.11 – Schéma de principe de la pulvérisation cathodique avec effet magnétron.

L'efficacité de pulvérisation ($Y = \frac{\text{nombre de particules arrachées}}{\text{nombre de particules incidentes}}$) est :

$$Y \propto \frac{M_{\text{metal}} M_{\text{ion}}}{(M_{\text{metal}} + M_{\text{ion}})^2} \frac{E_c}{U_{\text{metal}}} \quad [93] \quad (1.3)$$

avec $M_{\text{metal,ion}}$ les masses des atomes de la cible et des ions Ar⁺, E_c l'énergie cinétique des ions (500-1000 eV) et U_{metal} l'énergie de liaison des atomes de la cible. Y est de l'ordre de l'unité et est étroitement lié à la vitesse de dépôt. L'énergie des atomes ainsi extraits est de l'ordre de 10 eV. La majorité de l'énergie incidente est dissipée en énergie

thermique, impliquant la nécessité d'utiliser un système de refroidissement au niveau de la cible. Le taux de dépôt et l'énergie des atomes à leur arrivée sur le substrat peuvent être contrôlés *via* la pression du gaz dans l'enceinte et le potentiel électrique appliqué à la cible (voir équation 1.3). En effet, une forte pression implique une population d'argons ionisés et neutres plus importante. La première entraîne de façon évidente un nombre de collisions des ions avec la cible plus grand, augmentant le taux de dépôt, tandis qu'une population importante d'argons (neutres et ionisés) dans l'enceinte augmente le nombre de chocs avec les atomes de la cible lors de leur chemin entre la cible et le substrat (le libre parcours moyen d'un atome est de l'ordre de 5×10^{-3} cm.mbar, et la distance séparant la cible du substrat est d'environ 15 cm), réduisant le taux de dépôt. Il existe alors une pression optimale pour un taux de dépôt maximal. L'augmentation du nombre de collisions des atomes pulvérisés entraîne également une diminution de leur énergie à leur arrivée sur la couche, diminuant les chances de pulvérisation des atomes déjà déposés, ou de pénétration de l'atome incident dans la couche [94]. D'autre part, l'augmentation du potentiel électrique entraîne une ionisation plus importante du gaz dans l'enceinte, augmentant le nombre de collisions des ions avec la cible, et ainsi le taux de dépôt. Une tension importante augmente également la vitesse d'arrivée des ions sur la cible, c'est-à-dire leur énergie. Cette énergie étant transférée aux atomes arrachés à la cible, ils arrivent également plus rapidement sur le substrat et peuvent créer des défauts dans la couche. En particulier lorsqu'un matériau lourd est pulvérisé sur une couche d'un matériau léger, l'interface peut être fortement détériorée. C'est un argument qui est largement utilisé pour justifier le fait qu'une interface Co/Pt est différente d'une interface Pt/Co par exemple, la rugosité et le mélange des interfaces d'un métal lourd sur un métal léger étant plus importants que pour les interfaces opposées.

Le bâti de pulvérisation utilisé au cours de cette thèse a été pourvu d'un four afin de réaliser des dépôts à haute température. Ce four permet d'atteindre facilement des températures allant jusqu'à 800 °C, nécessaires à la croissance de certains matériaux. Cependant, la reproductibilité de ce four, de même que pour celui de l'EJM, n'est pas acquise. C'est pour cela que toutes les températures exprimées dans ce manuscrit seront à considérer avec une précision de ± 50 °C.

B. Techniques de caractérisations structurales

La qualité structurale des couches minces a une forte influence sur leurs propriétés magnétiques. Leur caractérisation structurale est alors une étape importante dans le processus d'élaboration de couches minces magnétiques. Il existe différents moyens de caractériser la structure des échantillons. Le RHEED, présenté précédemment, joue un rôle très intéressant mais préliminaire puisqu'il permet d'observer uniquement la surface du dépôt. Il existe un grand nombre de techniques de caractérisation. Nous nous intéresserons ici uniquement à deux techniques, la microscopie électronique en transmission à haute résolution et la caractérisation par rayons X, qui permettent d'analyser la qualité cristalline des couches minces ainsi que l'état des interfaces. D'autres techniques ont été utilisées au cours de cette thèse pour observer l'aspect de la surface des échantillons telles que la microscopie électronique à balayage et la microscopie à force atomique. Ces techniques ne seront pas décrites dans ce manuscrit.

1) Diffraction de rayons X

La diffraction de rayons X sur couches minces permet deux types de mesures. La diffraction aux petits angles, ou réflectivité, donne accès à l'épaisseur des différentes couches ainsi qu'à la rugosité des interfaces. La diffraction aux grands angles permet d'étudier la structure cristalline.

La réflectivité de rayons X, associée à des simulations, permet de quantifier précisément les épaisseurs des différentes couches, leurs densités, ainsi que les rugosités d'interface et de surface. La figure 1.12 présente un exemple de réflectivité d'une couche mince de FeGe. L'intensité mesurée est maximale avant l'angle d'incidence critique θ_c , en-deçà duquel la réflexion est totale. La valeur de cet angle est lié à l'indice de réfraction n_2 du matériau en surface de l'échantillon par la loi de Snell-Descartes (dans le cas particulier de la réflexion totale on a $\cos \theta_c = n_2$) et permet alors de déterminer sa densité électronique $\rho \propto \theta_c^2$. Au-delà de cet angle critique, l'intensité décroît rapidement, modulée par des oscillations appelées franges de Kiessig. Les franges de Kiessig résultent des interférences constructives et destructives des rayons X réfléchis sur deux interfaces. La période des oscillations permet de quantifier l'épaisseur des couches *via* l'équation $2d \cdot \Delta(\sin \theta) = k\lambda$, où d est l'épaisseur d'une couche, θ l'angle d'incidence des rayons X, λ la longueur d'onde des rayons X, et k un nombre entier. L'épaisseur d mesurable se situe entre 1 et 200 nm, la borne maximale étant déterminée par la résolution instrumentale. L'amplitude des oscillations de Kiessig est d'autant plus grande que la différence de densité électronique entre deux couches adjacentes est importante, et leur atténuation est due à la rugosité de l'interface. Les mesures de réflectivité permettent alors de déterminer les épaisseurs, densités électroniques et rugosités de chacune des couches d'un échantillon. On peut ainsi déduire des mesures représentées sur la figure 1.12 que la couche de FeGe a une épaisseur de 66 nm, protégée par une couche d'aluminium oxydé d'environ 5 nm (responsable du battement plus large). De plus, l'ajustement réalisé à l'aide du logiciel GenX [95] permet de déterminer la rugosité à l'interface entre le substrat et la couche, ainsi que la densité du matériau déposé (qui dans ce cas correspond bien à la valeur attendue pour le FeGe B20). Les mesures de réflectivité réalisées sur les couches minces de FeGe et sur les multicouches seront décrites plus en détails dans la suite du manuscrit.

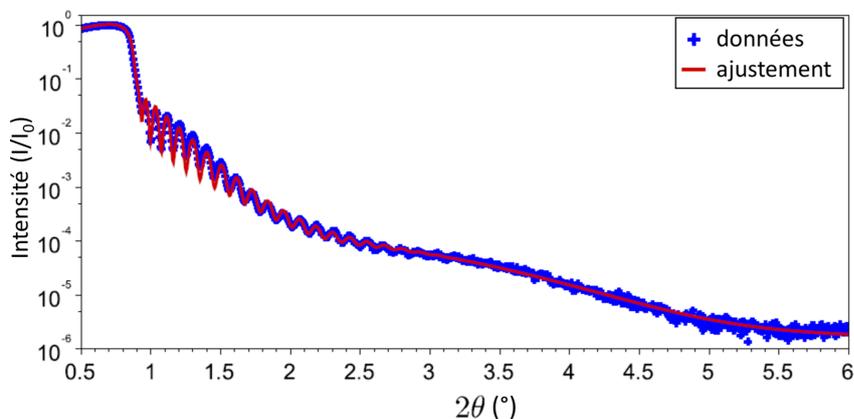


Fig. 1.12 – Réflectivité d'une couche mince de FeGe

La diffraction de rayons X permet quant à elle de déterminer la ou les structures cristallines présentes dans nos couches minces, ainsi que l'orientation des cristaux. Le diffractomètre utilisé au cours de cette thèse permet de régler l'angle d'incidence ω du faisceau de rayons X et l'angle de diffraction 2θ , ainsi que l'angle de déclinaison χ et l'azimut φ de l'échantillon (voir figure 1.13). On peut ainsi atteindre des vecteurs de diffraction $\vec{Q} = \vec{k}_d - \vec{k}_i$ dans une partie suffisante de l'espace réciproque pour caractériser les phases présentes et leur orientation cristallographique.

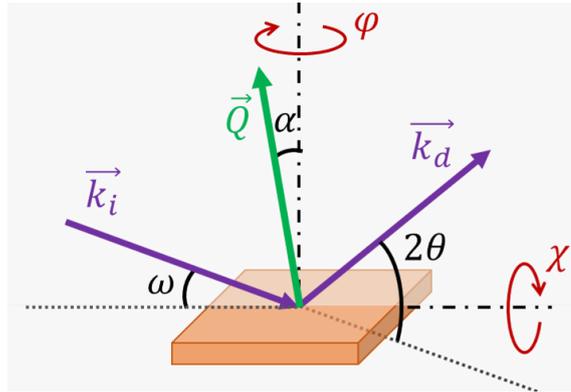


Fig. 1.13 – Schéma de principe de la diffraction de rayons X. \vec{k}_i et \vec{k}_d sont les vecteurs d'onde incidente et diffractée.

La configuration classique de mesures de diffraction de rayons X est la configuration symétrique $\theta/2\theta$, où l'angle d'incidence est égal à la moitié de l'angle de diffraction ($\omega = \theta$). Elle permet de sonder les vecteurs de diffraction \vec{Q} perpendiculaires à la couche, c'est-à-dire les plans atomiques parallèles à la surface. Cela permet en général d'identifier les phases cristallographiques présentes.

Il est également possible de réaliser des mesures en angle rasant, couramment utilisées pour l'étude de structures polycristallines de type poudre. L'angle d'incidence ω est fixé à quelques degrés et l'on balaye uniquement l'angle de diffraction. La réalisation de ces mesures à différents azimuts permet de déterminer si la couche est une poudre ou non. Si les spectres en angles rasants sont identiques quel que soit l'azimut φ , cela signifie que les grains ne présentent aucune direction préférentielle. En outre, la longueur de pénétration des rayons X étant nettement plus grande que l'épaisseur des couches minces, les mesures en angle rasant permettent de sonder un plus grand volume du matériau intéressant et de diminuer le signal du substrat.

Dans le cas où la couche mince n'est pas une poudre, des mesures asymétriques peuvent être menées afin de déterminer la(les) direction(s) de croissance du matériau et son orientation dans le plan. Ces mesures consistent à fixer l'angle de diffraction 2θ , caractéristique d'une longueur du vecteur de diffusion \vec{Q} et donc d'un plan (hkl) particulier du cristal étudié, puis de balayer une partie de l'espace réciproque en faisant varier l'angle d'incidence ω et l'azimut φ . Sur le même principe, les figures de pôles, où les variables sont φ et χ , et $\omega = \theta$, permettent d'avoir une vision globale de l'orientation du cristal. La figure 1.14, où 2θ est fixée pour observer les plans (111) de la phase cubique du CoPt, montre une tâche centrale et un anneau continu à $\chi = 70.5^\circ$. Ceci indique une croissance selon la direction $\langle 111 \rangle$ sans direction préférentielle dans le plan. On parle dans ce cas d'une couche texturée.

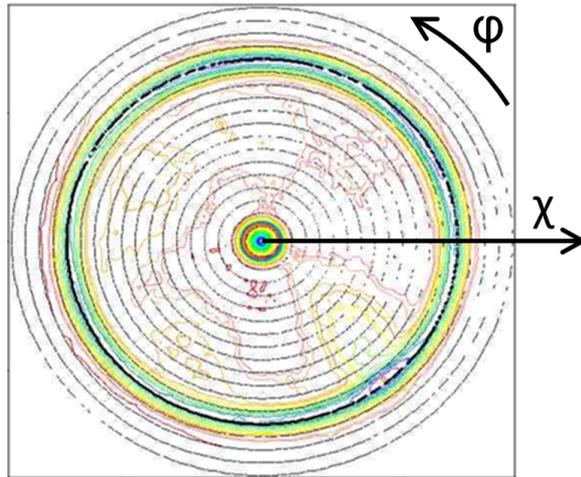


Fig. 1.14 – *Figure de pôles d'une couche mince de CoPt texturée (111)*

Il est possible d'autre part d'obtenir des informations sur la taille des cristaux avec des balayages $2\theta/\omega$, c'est-à-dire avec $\alpha = 2\theta/2 - \omega$ constant. Ces balayages permettent de mesurer la dispersion de la longueur du vecteur de diffraction \vec{Q} choisi. On peut ainsi évaluer la taille t des cristallites selon la direction de \vec{Q} grâce à la formule de Scherrer $t = \frac{k\lambda}{(h-s)\cos\theta}$ [96], où k est un facteur de correction souvent pris égal à 0.89, λ est la longueur d'onde des rayons X, h est la largeur à mi-hauteur du pic identifié dans le spectre, s est la largeur associée aux défauts de l'optique instrumentale (même pour un cristal parfait de taille infinie le pic a une certaine largeur), et θ est le demi-angle de diffraction comme défini plus haut.

La réflectivité et la diffraction de rayons X sont alors des outils précieux pour caractériser très précisément la qualité du dépôt ainsi que la structure cristalline d'un échantillon. Cette technique est non destructive et réalisable sur une grande variété de matériaux et de tailles d'échantillon. Elle est facile à mettre en œuvre et très accessible. Cependant, cette technique est limitée dans le cas d'échantillons non uniformes à cause de la largeur du faisceau d'au moins quelques millimètres, moyennant les informations sur un grand volume. Une solution pour obtenir les mêmes informations mais à une échelle nanoscopique, est l'utilisation de la microscopie électronique en transmission.

2) Microscopie électronique en transmission

La microscopie électronique en transmission (MET) est basée sur la diffusion du faisceau d'électrons par le matériau qu'il traverse. La longueur d'onde des électrons, variant avec la tension d'accélération (en général entre 200 et 400 kV), est de l'ordre du picomètre. Elle permet alors d'accéder à une résolution latérale proche de l'angström et d'observer les "colonnes d'atomes" par suite d'interférences constructives, malgré les aberrations chromatiques et sphériques qui réduisent considérablement la résolution. La MET permet également d'atteindre un champ de vue assez grand en même temps que cette très grande résolution. Cela offre la possibilité d'obtenir des clichés exploitables rapidement, permettant l'observation de la répartition des grains de la couche mince observée et de l'état des

interfaces à un endroit précis. La MET en haute résolution est donc très complémentaire des mesures de rayons X qui ne donnent accès qu'à des informations moyennes sur toute la surface éclairée.

Il est également possible d'utiliser la MET en mode balayage (METB). Dans ce mode, le faisceau d'électrons est focalisé sur la couche et balaye la surface de l'échantillon. Ce mode offre une résolution plus faible, de l'ordre de quelques nanomètres, mais permet d'accéder à des caractéristiques de la couche à un point précis. On peut par exemple obtenir les figures de diffraction en chacun des points de l'image, et ainsi observer la variation de cristallinité avec une résolution nanométrique. Cette technique est particulièrement utilisée pour mesurer les déformations et contraintes nanoscopiques. Un microscope électronique peut également être équipé d'un spectromètre à rayons X (EDS pour *energy dispersive spectroscopy*), permettant une analyse chimique de l'échantillon à l'échelle atomique. Le passage d'électrons de haute énergie dans un atome peut éjecter un de ses électrons de cœur. Un électron de plus haute énergie comblera alors cette lacune en émettant un rayonnement X d'une énergie quantifiée. Cette technique est très utilisée pour observer l'arrangement de couches monoatomiques entre elles, ou pour imager clairement des multicouches très fines.

La MET est un outil extrêmement puissant, mais difficile à mettre en œuvre. En effet, puisqu'il s'agit d'une observation en transmission, il est nécessaire que l'échantillon soit suffisamment mince (de l'ordre de 100 nm). Il est alors indispensable de préparer l'échantillon avant son introduction dans le microscope. Deux voies de préparation sont possibles. La première, la plus simple, est de déposer directement le matériau sur une grille MET (grille en cuivre sur laquelle est suspendue une dentelle de carbone). Cette technique a été utilisée pour l'observation des multicouches magnétiques qui ne nécessitent pas un substrat particulier dans notre cas. La seconde technique, chronophage et délicate, est l'amincissement de l'échantillon par voie mécanique ou par faisceau d'ion (FIB). Dans le cas des échantillons de FeGe, l'amincissement par FIB risquant d'amorphiser la couche, nous avons réalisé des vues en coupe par polissage mécanique avec tripode.

Je vais à présent détailler les processus d'élaboration et les caractérisations structurales des couches minces de FeGe B20, puis des multicouches du type [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2]_n.

III Développement d'un protocole de croissance pour les couches minces de FeGe B20

L'alliage FeGe dans sa phase équiatomique cubique B20 a été reconnu comme un matériau dans lequel une phase de skyrmions pouvait être stabilisée [57]. Mais la croissance de cet alliage n'est pas triviale. En effet, le diagramme de phase des alliages Fe-Ge représenté sur la figure 1.15 est complexe. Cela montre que de très nombreux alliages sont stables et qu'il ne sera pas aisé d'obtenir un alliage monophasé. De plus, il existe trois phases cristallines du FeGe 50-50 : une phase cubique B20, une phase hexagonale B35 et une phase monoclinique. Ces trois phases se forment à des températures différentes par la technique de Richardson [97]. Cette technique consiste en la fusion de Fe et de Ge sous atmosphère contrôlée à des températures supérieures à 750 °C et pendant des temps longs (de l'ordre de la semaine).

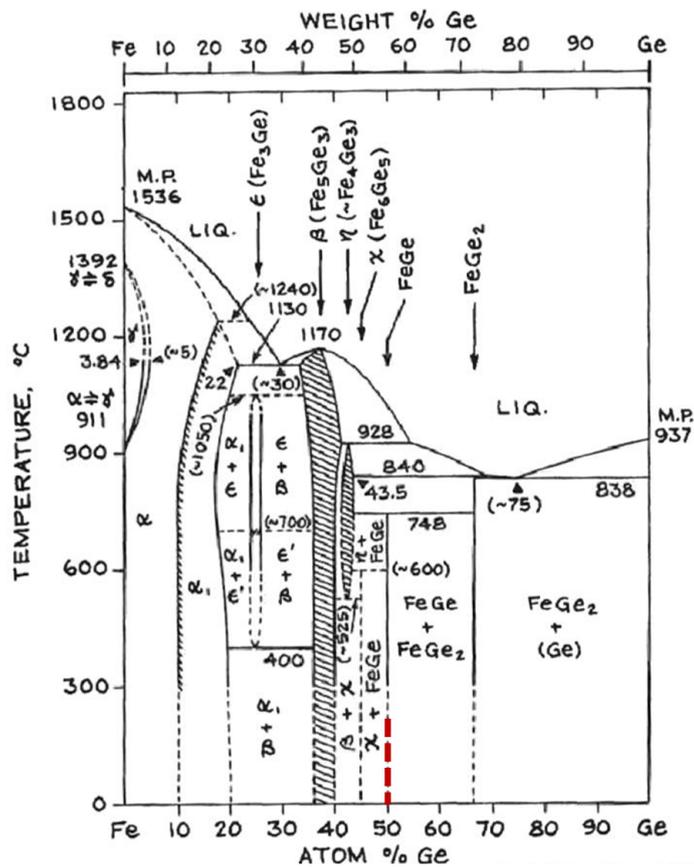


Fig. 1.15 – Diagramme de phase des alliages de Fe-Ge [98]. La zone du FeGe B20 est surlignée en rouge.

D'autre part, malgré la possibilité de fabriquer des cristaux de FeGe B20 très purs, ces cristaux sont très petits et peu adaptés à l'intégration dans un système industriel. Les systèmes en couches minces sont plus appropriés à l'industrie de la microélectronique. Des couches minces de FeGe ont déjà été réalisées par pulvérisation cathodique sur substrat de Si (111) à température élevée [74, 99]. La maille cristalline du FeGe B20 (111),

tournée de 30° présente un désaccord paramétrique de seulement 0.06% avec celle du Si (111) ($a_{FeGe} = 4.700 \text{ \AA}$ et $a_{Si} \cdot \cos(30^\circ) = 4.703 \text{ \AA}$). La figure 1.16 permet de visualiser l'arrangement des atomes de Fe et de Ge par rapport aux atomes de Si.

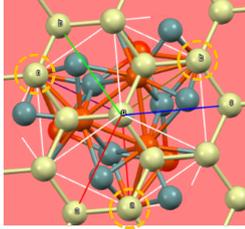


Fig. 1.16 – *Superposition des réseaux de Si (111) et FeGe B20 (111) tourné de 30° . (Le fer et le germanium sont représentés en orange et bleu, le silicium en beige.)*

Cependant, le bâti de pulvérisation cathodique utilisé au cours de cette thèse n'était pas équipé d'un four de recuit à l'origine. Les dépôts de FeGe à haute température suivant les protocoles de Huang *et al.* [74] et Porter *et al.* [99] étaient alors non réalisables. De nouveaux protocoles expérimentaux ont alors été mis en place. Dans un premier temps, la croissance de FeGe par pulvérisation cathodique à température ambiante, suivi ou non d'un recuit *ex situ*, a été étudiée. La caractérisation de ces échantillons a révélé la nécessité de chauffer le substrat pendant le dépôt de la couche de FeGe. Une deuxième piste a été l'épitaxie en phase solide. Cette technique de croissance consiste à déposer une fine couche d'un matériau (dans notre cas le Fe) sur un substrat du second matériau souhaité (ici le Ge), puis à recuire l'échantillon ainsi formé. Le recuit entraîne alors l'interdiffusion des deux matériaux et la formation d'un alliage dont la nature dépend de la température et de la durée du recuit. Enfin, après installation du four de recuit dans le bâti de pulvérisation cathodique, nous avons pu réaliser des dépôts par pulvérisation cathodique à haute température. Un protocole de croissance optimal pour l'obtention de couche mince de FeGe B20 de bonne qualité a alors été développé.

A. Croissance par pulvérisation à température ambiante

Dans un premier temps, nous avons réalisé des dépôts de FeGe par pulvérisation cathodique à température ambiante suivis d'un recuit. L'obtention des bonnes conditions stœchiométriques étant délicate par codépôt de Fe et de Ge, l'utilisation d'une cible de Fe-Ge 50-50 permet de simplifier considérablement le processus de croissance. Des mesures EDS réalisées au microscope électronique à balayage (MEB) ont permis de confirmer la bonne stœchiométrie de la cible (voir figure 1.17), ainsi que celle des dépôts réalisés avec cette cible. Des couches minces de FeGe ont ainsi été déposées sur différents substrats, et à des températures et des temps de recuits variés.

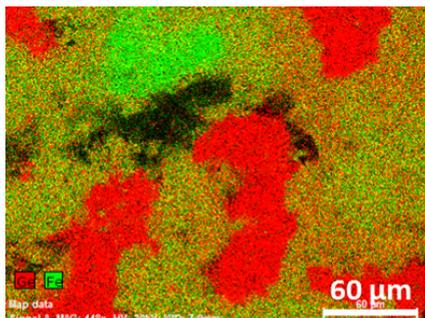


Fig. 1.17 – *Composition chimique de la cible de FeGe observée par EDS en MEB. En rouge est représenté le germanium et en vert le fer.*

Des couches minces de FeGe de 50 à 100 nm ont été déposées sur substrat de silicium oxydé (SiOx), puis recuites *ex situ* à 500 °C pendant 1h sous un vide de l'ordre de 10^{-2} mbar. Dans ce cas, le substrat n'a subi aucun traitement chimique particulier et présente donc une surface amorphe. Des spectres de diffraction aux rayons X ont été réalisés sur cette couche avant et après recuit. En particulier, les mesures en angle rasant révèlent la présence d'une poudre. En effet, les spectres avec un angle d'incidence ω fixé à 3° et à trois azimuts différents, $\varphi = 35^\circ$, 12° et 20° (figure 1.18) sont identiques entre eux, que ce soit avant ou après recuit. De plus, la comparaison de ces spectres avec celui d'une poudre de FeGe monoclinique (courbes rouges, simulées à partir des données mesurées et reportées dans [100]), permet de conclure que le FeGe déposé est dans sa phase monoclinique lorsqu'il n'a aucune contrainte épitaxiale. Cela permet d'autre part de confirmer à nouveau la bonne stœchiométrie du dépôt réalisé avec la cible de Fe-Ge. On observe d'autre part un affinement des pics dans le spectre de diffraction réalisé sur l'échantillon après recuit. Il semble donc que la taille des cristaux augmente lors du recuit.

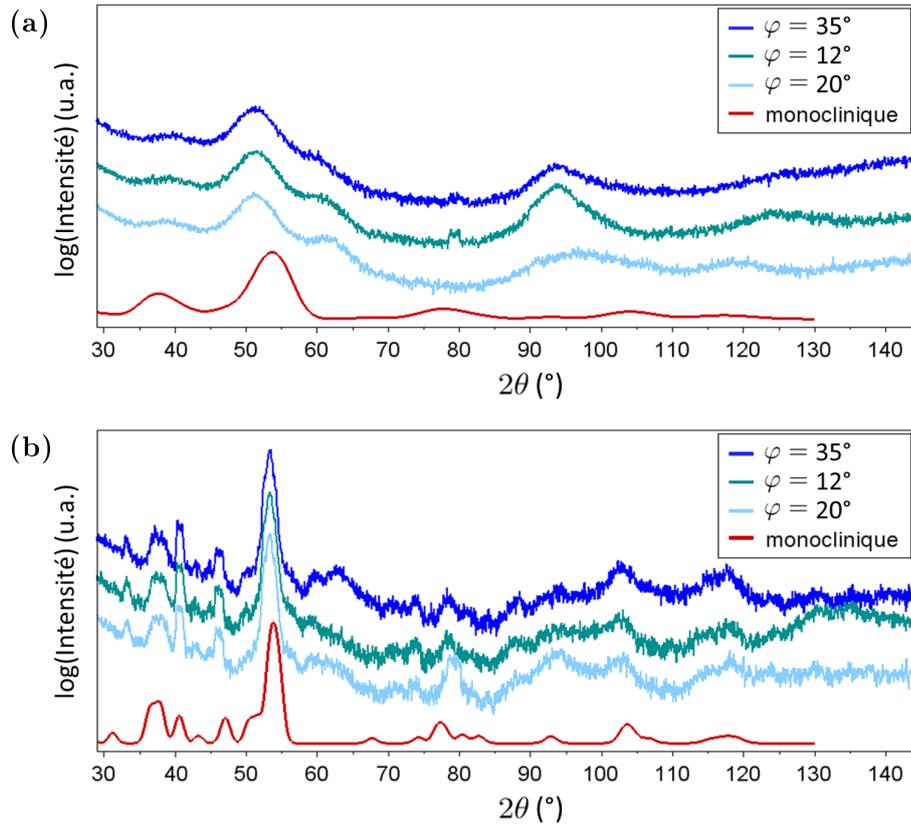


Fig. 1.18 – Diffraction en angle rasant d'une couche mince de FeGe déposée à température ambiante sur substrat de SiOx *a)* avant et *b)* après recuit à 500 °C pendant 1h. Les courbes rouges représentent les spectres de diffraction X d'une poudre de FeGe monoclinique. Dans le cas *a)*, cette courbe simule des grains de 2 nm, tandis que dans *b)* ce sont des grains de 7 nm (ces tailles sont à considérer comme des bornes inférieures car la faible résolution des mesures en angle rasant entraîne un élargissement important des pics de diffraction).

Le même protocole a alors été suivi avec des substrats de Si (111) qui présente le bon paramètre de maille pour obtenir l'épitéxie du FeGe B20 (111). Avec ou sans préparation chimique du substrat, à des températures et des temps de recuit différents, les spectres obtenus par diffraction de rayons X sont similaires à ceux de la figure 1.18. Le chauffage *in situ* pendant le dépôt est donc nécessaire à la croissance de FeGe B20.

B. Croissance par interdiffusion

Une seconde voie de croissance d'un alliage, autre que le codépôt, est l'interdiffusion. Il s'agit de déposer les deux matériaux l'un sur l'autre, puis de chauffer la bicouche jusqu'à l'obtention de l'alliage souhaité. La nature de l'alliage ainsi que sa pureté dépendent de la quantité des deux matériaux déposés, de la température et du temps du recuit. Cette technique permet la croissance facile et pure de certains alliages difficiles à obtenir autrement, mais peut également inhiber la croissance d'autres alliages. Dans le cas de l'alliage FeGe, il a déjà été observé que cette technique permet la croissance de la phase B20. En effet, une bicouche de Fe/Ge déposée sur un substrat de SiO₂ dans les bonnes proportions et chauffée à 100 °C entraîne la formation de la phase cubique du FeGe. Cet alliage n'est cependant pas le seul formé et est accompagné des phases de Fe, de Fe₅Ge₃ et de FeGe hexagonal [101]. Il a également été observé qu'une couche mince de Fe₃Si (111) sur substrat de Ge (111) se réorganise en une tricouche FeGe B20/FeSi B20/FeGe B20 (201) lorsque celle-ci est chauffée à 450 °C [102]. Ces observations suggèrent que la croissance d'une couche mince épitaxiée de FeGe B20, dans la mesure où les conditions de dépôt et de recuit seront adaptées, est envisageable. Notre seconde tentative de croissance de couches minces de FeGe B20 a donc été par diffusion du fer dans des substrats de Ge (111).

1) Élaboration des couches minces Fe-Ge/Ge (111)

Les dépôts de fer ont été réalisés par EJM sur des substrats de Ge (111). Ces substrats ont été préalablement dégraissés par trempage dans un bain d'acétone chaud suivi d'un rinçage à l'éthanol. Une couche de 10 nm de fer a alors été déposée à température ambiante à une vitesse de 0.5 Å/s, puis recuite *in situ* pendant 2h à des températures variant de 300 °C à 850 °C. La mesure de température n'étant pas très stable ni précise, les recuits ont été effectués à courant constant. Les températures indiquées ici sont à considérer avec une marge de précision de ± 50 °C. Les échantillons ont été contrôlés tout au long des différentes étapes de dépôt et de recuit à l'aide du RHEED. La figure 1.19a présente les clichés RHEED du substrat de Ge (111), puis du dépôt de fer avant, pendant et après recuit à 580 °C. Les deux colonnes correspondent aux azimuts $\langle 010 \rangle$ et $\langle \bar{1}10 \rangle$ du Ge. La figure 1.19b présente un schéma du plan (111) du Ge. Afin de protéger ces échantillons de l'oxydation ils ont été couverts d'une couche de 8 nm d'aluminium. Les images du dépôt d'aluminium ne sont pas montrées ici mais présentent des anneaux, témoin d'une couche d'aluminium polycristallin en poudre. La figure de diffraction du Ge (111) présente des tiges très fines, confirmant la bonne qualité de la surface du substrat. La figure de diffraction RHEED réalisée après dépôt du Fe et avant recuit est formée de tâches. Cela témoigne d'une croissance 3D, c'est-à-dire que la couche de Fe avant recuit est très rugueuse. Au court du recuit, des tiges apparaissent aux mêmes positions que celles du Ge (111) et s'affinent. La position des tiges étant l'image dans l'espace réciproque

de la période cristalline de la surface diffusant le faisceau d'électrons, cela signifie que le cristal ainsi formé possède un excellent accord de maille avec le substrat. D'autre part, l'affinement des tiges est le témoin d'un lissage de la surface de la couche mince. Après 2h de recuit à 580 °C, des tiges supplémentaires apparaissent. Dans la direction $\langle 010 \rangle$ du substrat de Ge (première colonne de la figure 1.19a), on distingue trois tiges entre les principales. Cela peut être la marque d'une réorganisation du cristal selon un ordre plus grand que le paramètre de maille de l'alliage formé. Au second azimut (deuxième colonne), une tige apparaît à équidistance des précédentes, pouvant représenter un cristal dont le paramètre de maille est deux fois plus grand que le précédent dans cette direction. Ces figures de diffraction RHEED nous informent de la bonne épitaxie de la couche déposée. Le cristal ainsi formé reste cependant à déterminer.

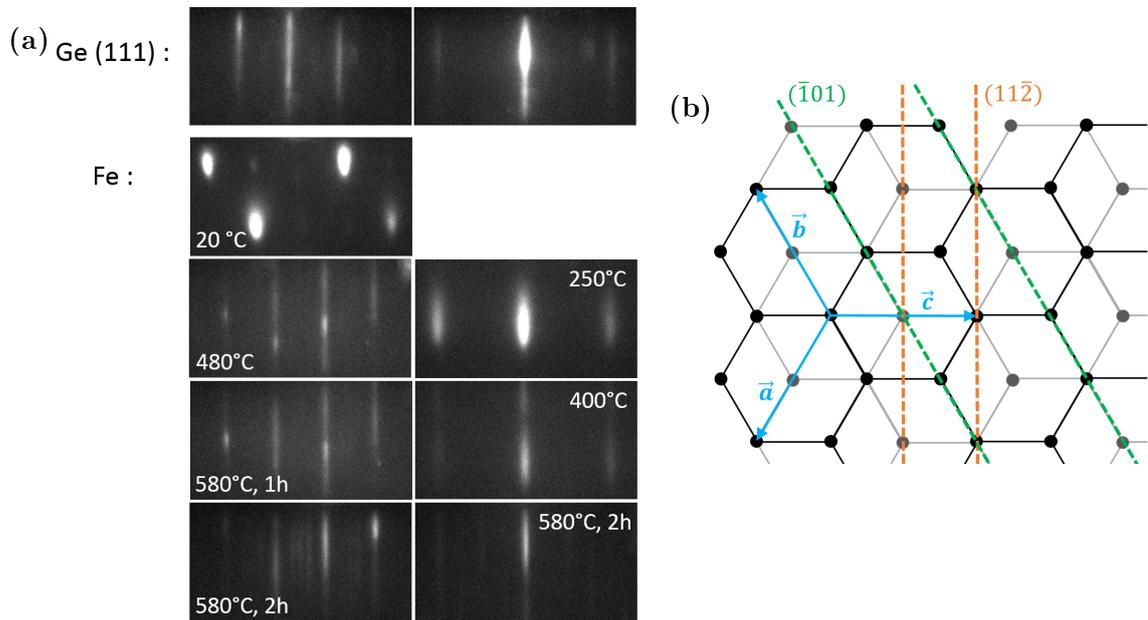


Fig. 1.19 – *a) Diffraction RHEED avant et après le dépôt de fer puis pendant le recuit, selon deux azimuts. La première colonne représente la diffraction des plans $(\bar{1}01)$, la seconde la diffraction des plans $(11\bar{2})$. b) Schéma du Ge vu selon la direction $\langle 111 \rangle$. Les plans $(11\bar{2})$ et $(\bar{1}10)$ sont représentés en pointillés.*

2) L'alliage Fe-Ge après recuit à basse température

Des mesures de réflectivité ont été réalisées afin de déterminer l'épaisseur de l'alliage créé et la qualité de l'interface entre cet alliage et le substrat. Les mesures de diffraction de rayons X ont permis quant à elles d'identifier les phases cristallines présentes dans nos couches minces. Des mesures de diffraction en angle rasant ont confirmé que les couches sont épitaxiées sur toute leur épaisseur. La figure 1.20 présente les mesures de réflectivités et de diffractions $\theta/2\theta$ des échantillons recuits à 300, 400, 450, 580 et 800 °C (rappelons que ces valeurs de température sont précises à 50 °C près). Un spectre a également été réalisé sur le substrat de Ge (111) seul afin d'identifier les pics dus aux longueurs d'onde parasites de la source de rayons X.

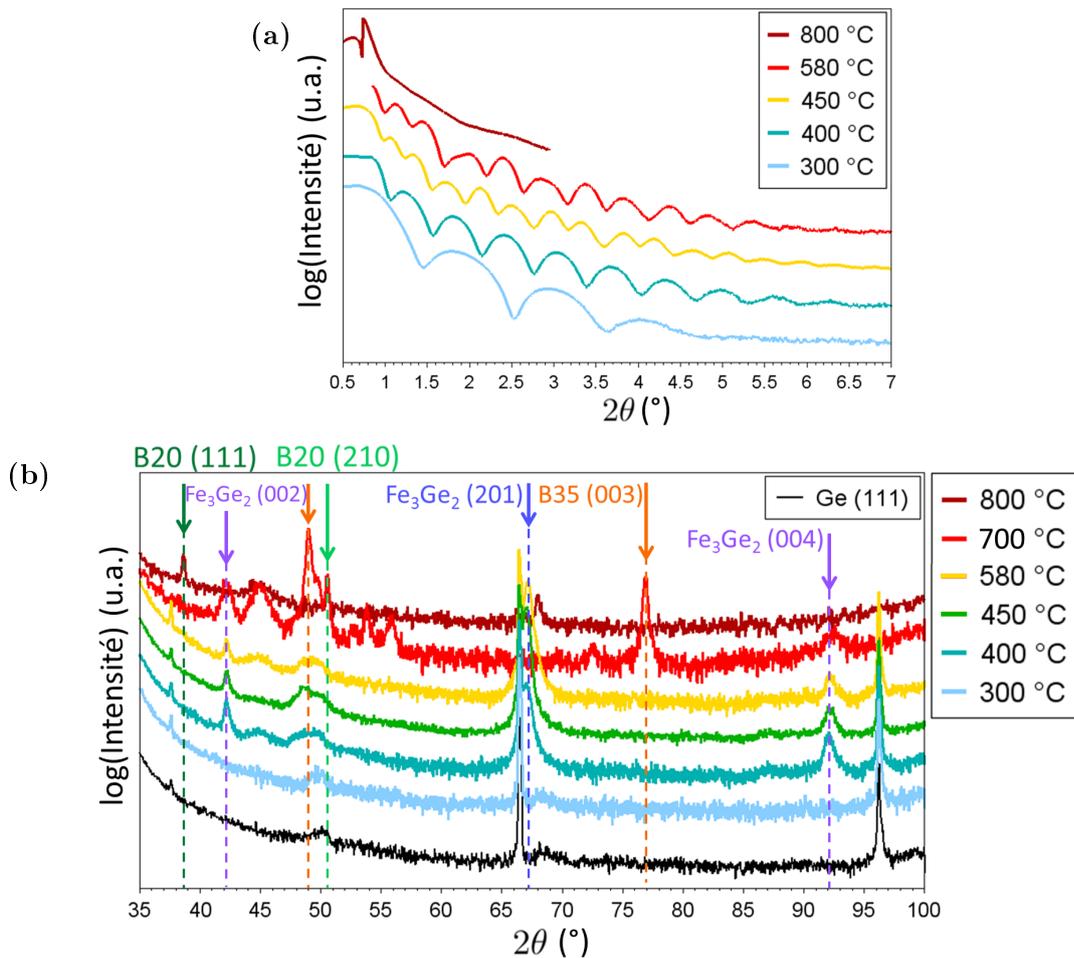


Fig. 1.20 – *a*) Réflectivité et *b*) diffraction de rayons X après recuit à 300, 400, 450, 580 et 800 °C du dépôt de fer sur Ge (111).

L'ajustement de la mesure de réflectivité de l'échantillon recuit à 300 °C (en bleu clair sur la figure 1.20a) indique une épaisseur de 9 nm avec une rugosité d'interface d'environ 4 Å. La consigne de dépôt de fer étant 10 nm, cela suggère qu'à cette température le fer n'a pas diffusé dans le substrat. La maille du fer étant cubique et avec un paramètre de maille proche de la moitié de celui du germanium, on peut supposer que le fer a crû de façon épitaxiale selon la direction $\langle 111 \rangle$. D'autre part, le spectre de diffraction de cet échantillon ne présente aucun pic supplémentaire par rapport au spectre du Ge (111), et la raie (111) du fer est éteinte. Nous avons alors exploré l'espace réciproque *via* des mesures asymétriques afin de confirmer la présence de la phase cubique du fer. Les raies (211) et (220) sont en théorie atteignables avec notre diffractomètre (voir tableau 1.3). Ainsi, en fixant simultanément 2θ et ω aux valeurs souhaitées, un balayage en φ permet de confirmer la présence de Fe (111), tourné de 60° par rapport au substrat (voir figure 1.21). Les pics du Fe sont les seuls présents dans le dépôt recuit à 300 °C, et sont absents pour les recuits à plus haute température. Ainsi, un recuit à 300 °C permet de réaliser une couche de Fe (111) épitaxié sur le Ge (111) tandis qu'un recuit à plus haute température entraîne la diffusion du fer dans le germanium.

| Raies (hkl) | 2θ | α | $\omega = 2\theta/2 - \alpha$ |
|-----------------|-----------|----------|-------------------------------|
| Fe (110) | 52.4° | 35.3° | <0° |
| Fe (200) | 77.2° | 54.7° | <0° |
| Fe (211) | 99.7° | 19.5° | 30.4° |
| Ge (422) | 101.5° | 19.5° | 31.3° |
| Fe (220) | 123.9° | 35.3° | 26.7° |
| Ge (440) | 126.9° | 35.3° | 28.2° |

Tab. 1.3 – Liste non exhaustive des raies du Fe et du Ge, leur angle de diffraction 2θ , l'angle α entre la raie (hkl) et la raie (111) et l'angle d'incidence ω correspondant.

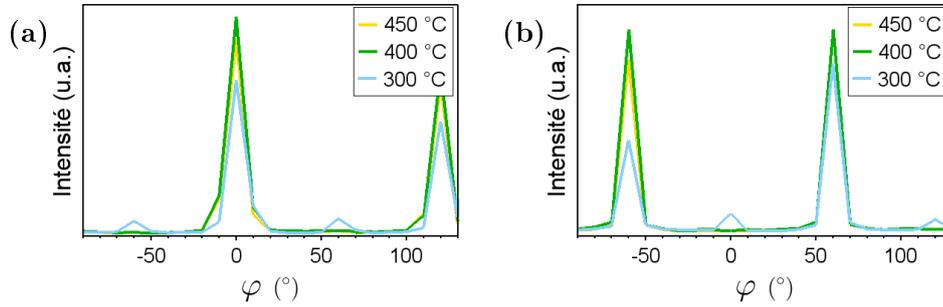


Fig. 1.21 – Balayages en φ pour la recherche de la présence du Fe (111) dans les échantillons recuits à 300 °C, 400 °C et 450 °C. *a)* Raie (211) du Fe ($2\theta = 99.7^\circ$ et $\omega = 30.4^\circ$). *b)* Raie (220) du Fe ($2\theta = 123.9^\circ$ et $\omega = 26.7^\circ$). Les grands pics représentent les raies (422) et (440) du Ge. Les petits pics, présents uniquement pour le recuit à 300 °C, représentent le Fe avec une rotation de 60° par rapport au Ge.

Des mesures de MET à haute résolution (MET-HR) ont également été réalisées sur cet échantillon recuit à 300 °C. La figure 1.22a montre une image en coupe de la couche de Fe sur substrat de Ge (en haut sur l'image). Un traitement de Fourier permet d'identifier les raies de Bragg du substrat (entourées en rouge sur la figure 1.22b). Dans ce cas, la direction $\langle 111 \rangle$ pointe vers le bas (flèche jaune), et le plan de coupe est le plan $(\bar{1}10)$ du Ge. Les tâches non entourées de rouge correspondant à la couche mince, il est possible d'identifier la structure cristalline du Fe et sa direction. Les réseaux réciproques du Fe et du Ge, tracés à partir de la figure de diffraction obtenue par transformée de Fourier (TF), sont représentés sur les figures 1.22c) et d) en bleu et en rouge respectivement. Le réseau du Fe confirme une croissance de la phase cubique selon la direction $\langle 111 \rangle$ et avec une rotation de 60° par rapport au Ge (111) (Fe $\langle 111 \rangle \parallel$ Ge $\langle 111 \rangle$ et Fe $\langle 01\bar{1} \rangle \parallel$ Ge $\langle \bar{1}10 \rangle$).

Les mesures de réflectivité et de diffraction de rayons X associées à l'imagerie par microscopie électronique en transmission ont permis de montrer qu'un recuit de 2h à 300 °C d'un dépôt de Fe sur Ge (111) conduit à la formation d'une couche mince épitaxiée de Fe (111) tournée de 60° par rapport au substrat.

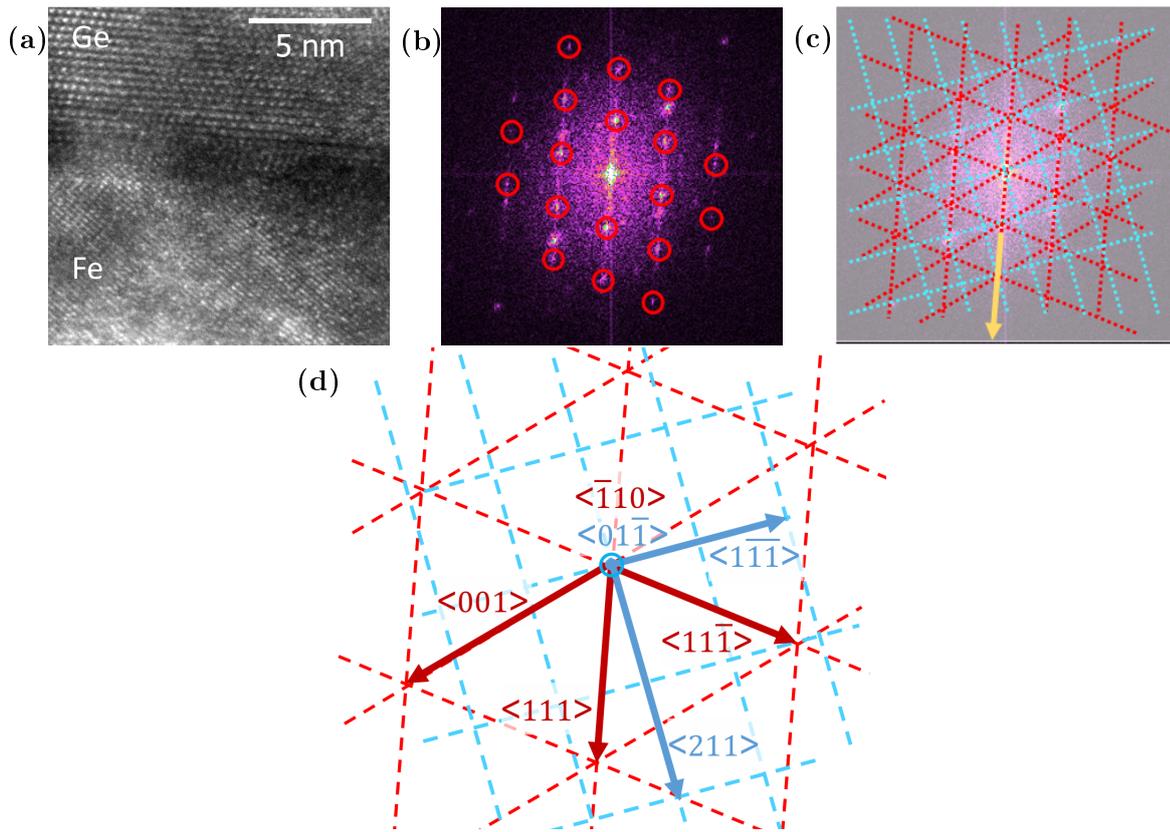


Fig. 1.22 – *a)* Image MET-HR de la zone autour de l'interface entre le Fe recuit à 300 °C et le substrat de Ge, *b)* sa TF avec les pics de Bragg du substrat identifiés entourés en rouge, *c)* les réseaux réciproques du Ge (en rouge) et du Fe (en bleu) tracés à partir des pics de Bragg de la transformée de Fourier (la direction $\langle 111 \rangle$ du substrat est indiquée par la flèche jaune), et *d)* l'identification des directions de ces réseaux réciproque représentés selon l'axe de zone $\langle \bar{1}10 \rangle$ du Ge.

3) L'alliage Fe-Ge après recuit à haute température

L'ajustement des mesures de réflectivités des échantillons recuits à 400, 450 et 580 °C montrent des épaisseurs de 16, 24 et 20 nm respectivement, et une rugosité de 5.6 ± 0.4 Å à l'interface entre le substrat de Ge et l'alliage formé par interdiffusion, proche des 4.7 Å mesurés dans le cas du recuit à 300 °C. Cette augmentation d'épaisseur par rapport aux 10 nm de fer déposé témoigne de la diffusion du fer dans le germanium. D'autre part, ces couches présentent des spectres de diffraction très similaires entre eux (figure 1.20b). Les pics qui apparaissent à 42.2° et 92.2° peuvent être attribués au Fe_3Ge_2 (002), et le pic à 67.1° au Fe_3Ge_2 (201). Cet alliage possède une structure hexagonale avec une base de côtés $a = b = 4.0$ Å et de hauteur $c = 5.0$ Å (phase β dans la figure 1.15). La valeur de ces paramètres peut varier en fonction de la composition de l'alliage qui varie entre 34 et 40 % de Ge [103]. Le Fe_3Ge_2 (001) présente un excellent accord de maille avec le Ge ($d_{\text{Ge}}(422) = d_{\text{Fe}_3\text{Ge}_2}(300)$ et $d_{\text{Ge}}(220) = d_{\text{Fe}_3\text{Ge}_2}(110)$). Sa croissance selon la direction $\langle 001 \rangle$ s'explique alors très facilement. La croissance selon la direction $\langle 201 \rangle$ est quant à elle moins évidente mais a été confirmée par la recherche des raies asymétriques listées dans le tableau 1.4 et dont les figures de diffraction sont représentées sur la figure 1.23. Cette

direction de croissance peut s'expliquer par un désaccord de maille relativement faible (voir figure 1.24) et une adaptation de la taille de la maille en fonction de la composition chimique.

| Raies (hkl) | 2θ | α | $\omega = 2\theta/2 - \alpha$ |
|-----------------|---------------|--------------|-------------------------------|
| (101) | 36.6° | 15.6° | 2.7° |
| (112) | 69.8° | 32.5° | 2.4° |
| (202) | 77.8° | 15.6° | 23.3° |
| (212) | 101.1° | 19.5° | 31.1° |

Tab. 1.4 – Liste des raies accessibles du Fe_3Ge_2 (201).

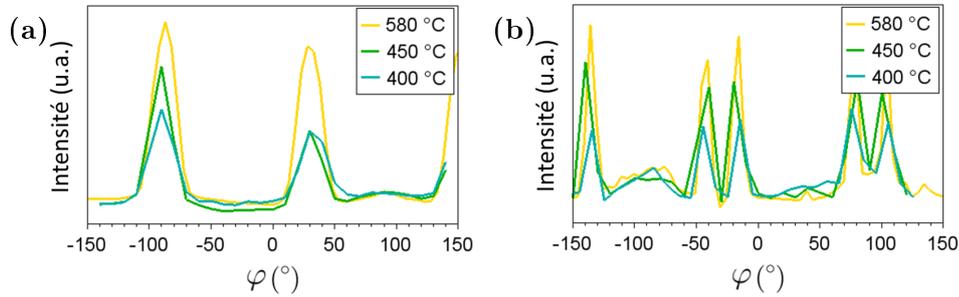


Fig. 1.23 – Balayages en φ pour la confirmation de la présence du Fe_3Ge_2 (201) dans les échantillons recuits à 400, 450 et 580 °C. a) Raie (101) du Fe_3Ge_2 ($2\theta = 36.6^\circ$ et $\omega = 2.7^\circ$). b) Raie (112) du Fe_3Ge_2 ($2\theta = 77.8^\circ$ et $\omega = 23.3^\circ$).

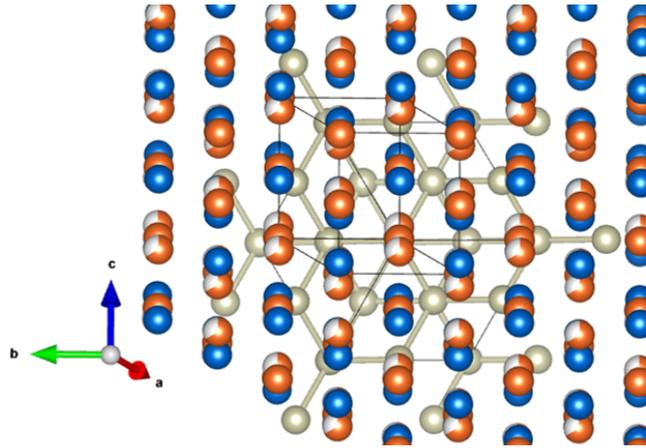


Fig. 1.24 – Schéma de la projection du cristal de Fe_3Ge_2 selon le plan (201) superposé au plan (111) du Ge. Les atomes de Ge du substrat sont représentés en beige, les atomes de Ge du Fe_3Ge_2 en bleu, et les atomes de Fe en orange. D'après les mesures asymétriques, la projection dans le plan de la direction $\langle 101 \rangle$ du Fe_3Ge_2 et la direction $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ du Ge sont alignées. Le repère représente les axes de la maille hexagonale du Fe_3Ge_2 .

D'autre part, nous avons observé la surface de ces couches par microscopie électronique à balayage (MEB) et par microscopie à force atomique (AFM). L'imagerie MEB en électrons secondaires est sensible aux gradients de topographie. Les électrons secondaires étant émis par la couche superficielle (~ 10 nm) de l'échantillon, l'intensité mesurée dépend fortement de la surface de la zone éclairée par le faisceau incident, dont le diamètre est de l'ordre de 10 nm. L'empreinte du faisceau d'électrons à la surface de l'échantillon est d'autant plus grande que l'angle d'incidence, c'est-à-dire le gradient de topographie, est grand. L'imagerie MEB ne permet donc pas d'apprécier la topographie de façon absolue et sera alors complétée par des mesures AFM qui permettent d'accéder à la topographie avec une précision de l'ordre de l'angström. L'imagerie MEB permet néanmoins de réaliser des mesures rapides et à grand champ (jusqu'à 1 mm^2), ce qui n'est pas possible en AFM. Ces deux techniques d'imagerie sont donc complémentaires, et nous ont permis de découvrir la présence de motifs pour le moins inattendus à la surface des couches réalisées par interdiffusion.

Les images présentées dans la figure 1.25 ont été réalisées sur le film mince recuit à 450°C , dont l'épaisseur extraite par réflectivité de rayons X est de 24 nm. L'image MEB présentée figure 1.25a révèle la présence de formes triangulaires plus ou moins tronquées à la surface de l'échantillon. La forme triangulaire s'explique par la symétrie 3 de nos échantillons déposés sur substrat de Ge (111). Une analyse chimique par EDS de la zone a montré l'absence totale de Fe sur le contour de ces formes. Il semblerait alors que ces formes triangulaires soient dessinées par des tranchées dans la couche mince, creusées au moins jusqu'au substrat, larges de 100 à 150 nm. La figure 1.25b présente la topographie d'un motif présent à la surface de la couche. On remarque alors que les triangles tronqués sont en réalité creusés à environ 30 nm dans la couche. La coupe réalisée le long de la ligne rouge de cette image AFM, présentée figure 1.25c, permet de confirmer l'hypothèse de la tranchée autour des motifs et d'évaluer la profondeur de celle-ci à 80 nm. Cette valeur est en réalité une limite inférieure puisque la pointe AFM n'est pas infiniment fine et longue. Ces motifs triangulaires creusés dans la couche apparaissent à la surface des films minces recuits à 400, 450 et 580°C , c'est-à-dire les films minces composés de Fe_3Ge_2 formé par épitaxie en phase solide. Ces motifs ne seront plus observés par la suite. La formation de ces motifs n'est pas expliquée, mais n'intervient que dans les couches minces composées de Fe_3Ge_2 .

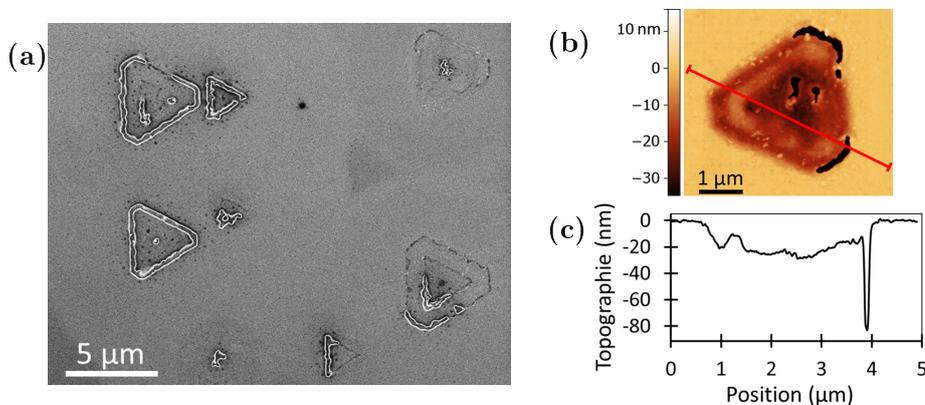


Fig. 1.25 – *a)* Image MEB de l'échantillon recuit à 450°C , *b)* image AFM du même échantillon et *c)* coupe suivant la ligne rouge.

Ainsi, le recuit pendant 2h à une température située entre 400 °C et 580 °C d'une couche de 10 nm de Fe déposée sur Ge (111) conduit à la formation d'une couche de 16 à 24 nm de l'alliage Fe₃Ge₂ epitaxié. Il semblerait alors que les recuits à des températures inférieures à 600 °C ne permettent pas au fer de diffuser suffisamment puisque les alliages créés sont riches en fer.

4) L'alliage Fe-Ge après recuit à très haute température

Le recuit à 700 °C fait apparaître de nouveaux alliages dans la couche. En particulier, la phase hexagonale B35 du FeGe a été identifiée (courbe rouge clair de la figure 1.20b). La présence de cette phase et sa direction de croissance selon la direction <001> a aussi été confirmée par des mesures asymétriques de diffraction de rayons X, non présentées ici.

Enfin, l'alliage FeGe B20 a également été observé pour un recuit à 800 °C. À cette température l'interface est très diffuse (courbe rouge foncé de la figure 1.20a). L'alliage croît dans ce cas selon les directions <111> et <210> ($2\theta = 38.64^\circ$ et 50.55° sur la courbe rouge foncé de la figure 1.20b). La finesse des pics (0.25 et 0.21° respectivement) indique une taille de grains de l'ordre de 35 nm. La phase B20 est cependant en très faible quantité, et n'a jamais été observée à nouveau dans d'autres croissances réalisées par épitaxie en phase solide.

En conclusion, en dessous de 300 °C le fer ne diffuse pas dans le Ge et forme une couche mince de Fe épitaxié de très bonne qualité. Entre 400 °C et 600 °C, le fer diffuse et forme l'alliage Fe₃Ge₂ qui se présente avec deux directions de croissance. Entre 700 et 800 °C, le fer parvient à diffuser suffisamment pour créer des alliages Fe-Ge 50-50, mais la phase hexagonale est plus stable que la phase cubique qui n'apparaît que très discrètement et de façon non reproductible. Cette technique ne semble donc pas efficace pour former l'alliage FeGe dans sa phase cubique B20.

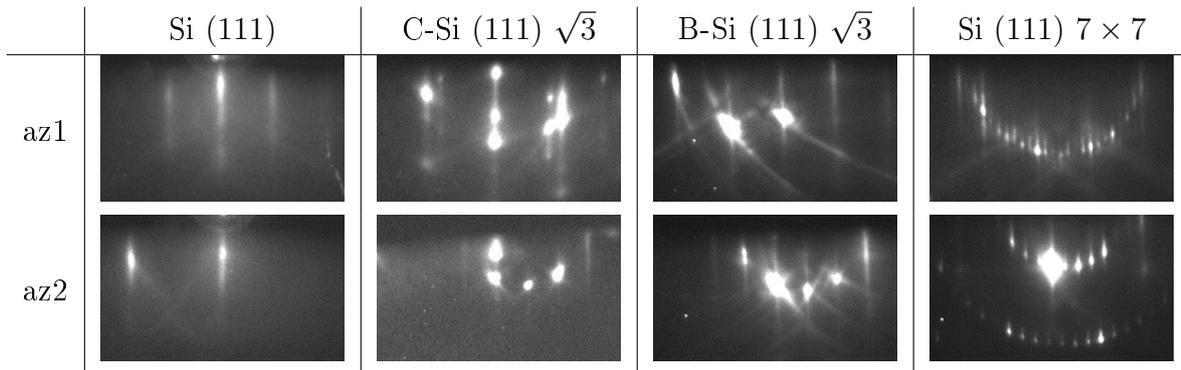
C. Codépôt à haute température

Nous avons finalement réalisé des codépôts de Fe-Ge par EJM, puis par pulvérisation cathodique. Le codépôt par EJM nous permet de contrôler la qualité de la surface du substrat avant le dépôt grâce au RHEED. Cela nous a permis de choisir le meilleur substrat et une préparation chimique optimale de la surface. Puis nous avons élaboré un protocole de dépôt reproductible et efficace pour la croissance de couches minces de FeGe B20.

1) Préparation du substrat de Si (111)

Le traitement de surface du substrat est une étape déterminante de la qualité des couches minces. Le protocole de préparation de surface du Si (111) est composé d'une étape de désoxydation par acide fluorhydrique (HF), entraînant une passivation de la surface par des liaisons hydrogènes, suivi d'un recuit à très haute température (~ 1100 °C). On obtient alors la reconstruction 7×7 du Si (111), témoin d'un excellent état de surface. Le

tableau 1.5 présente les différentes reconstructions que nous avons obtenues, observées au RHEED. Jusqu'à une température de recuit de 900 °C, aucune reconstruction n'apparaît. À partir d'une température de l'ordre de 1000 - 1100 °C, on observe une reconstruction $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 30° plutôt que la reconstruction 7×7 attendue. Cette reconstruction s'explique par une pollution au carbone de la surface du Si (111) [104]. Une passivation de la surface du substrat par une couche mince contrôlée d'oxyde permet d'inhiber la formation de carbure durant le recuit. Un traitement chimique par bains successifs d'acide nitrique et de HF permet de nettoyer et désoxyder efficacement la surface de substrat. Un dernier bain d'acide nitrique (HNO₃) forme une couche mince contrôlée d'oxyde, protégeant le substrat jusqu'à son introduction dans la chambre ultra-vide. Le substrat subit alors le même traitement thermique que précédemment. Dans notre cas, la reconstruction observée est à nouveau une reconstruction $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 30°. Le fort dopage en bore de nos substrats est à l'origine de cette reconstruction [105]. Ces deux reconstructions $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ sont cependant d'une qualité très différente. En effet, dans le cas de la pollution au carbone, on remarque que les tiges sont bosselées, ce qui témoigne d'une surface rugueuse. Tandis que la figure de diffraction de la reconstruction du substrat dopé exhibe des tiges très fines et laisse même apparaître les lignes de Kikuchi. Ces lignes résultent de la diffraction inélastique des électrons et témoignent d'une excellente qualité du substrat en surface et en volume. Enfin, le traitement chimique HNO₃/HF/HNO₃ suivi d'un recuit à 1100 °C sur un substrat de Si (111) non dopé mène bien à la reconstruction 7×7 recherchée.



Tab. 1.5 – Différentes reconstructions du Si (111) observées au RHEED. Les deux lignes représentent deux azimuts différents. La première colonne représente un substrat de Si (111) traité au HF et recuit à 650 °C. La seconde présente la figure de diffraction d'un substrat traité au HF et recuit à 1100 °C. La troisième colonne montre les figures de RHEED d'un substrat de Si (111) fortement dopé au bore traité au HNO₃/HF puis recuit à 1100 °C. Et la dernière colonne présente la reconstruction 7×7 observée sur un substrat de Si (111) intrinsèque qui a subi le même traitement que le précédent.

Ainsi, nous avons développé un protocole de préparation du substrat de Si (111) afin d'optimiser la qualité du dépôt de FeGe à suivre. Cependant, ce protocole n'est réalisable que dans le cas des dépôts par EJM. En effet, le four du bâti de pulvérisation cathodique ne permet pas d'atteindre des températures suffisamment hautes pour obtenir la reconstruction 7×7 . Dans le cas des dépôts par pulvérisation cathodique, le traitement thermique se résumera donc à un simple dégazage du substrat avant le dépôt de FeGe.

2) Développement du procédé expérimental de la croissance par pulvérisation cathodique

Nous avons alors procédé à la croissance de Fe-Ge sur ces substrats. Pour des raisons techniques, la stabilité du taux de dépôt du Ge n'a pu être atteinte par EJM, empêchant alors la réalisation d'échantillons de façon reproductible. Seules les couches réalisées par pulvérisation cathodique seront donc décrites ici. De plus, la croissance par pulvérisation cathodique permet l'utilisation d'une cible de Fe-Ge 50-50 et ainsi de s'affranchir des problèmes de stœchiométrie. Les paramètres de croissance seront alors adaptés afin d'optimiser la qualité des couches minces de FeGe.

Nous allons décrire ici le protocole expérimental développé pour la croissance de couches minces de FeGe B20 par pulvérisation cathodique. Avant introduction dans le bâti et après un dégraissage rapide à l'acétone, les substrats de Si (111) ont été trempés 10 min dans une solution d'acide nitrique concentrée à 70 % chauffée à 100 °C afin de nettoyer le substrat et de créer une couche contrôlée d'oxyde. Le substrat est ensuite désoxydé par un bain de 30 s dans du HF concentré à 10 %. Cette séquence est répétée une seconde fois. Les substrats de Si (111) présentent alors une surface désoxydée et atomiquement plane, et passivée par des liaisons hydrogènes. Pour éviter toute oxydation entre le traitement chimique et le dépôt, le substrat est transporté dans un bécher d'eau déionisée avant d'être installé rapidement sur la sole du four dans l'enceinte du bâti de pulvérisation cathodique. L'enceinte est alors mise sous vide et atteint des pressions de l'ordre de 10^{-7} mbar en 12h. Lorsque le vide est satisfaisant, le substrat est chauffé. Une augmentation lente de la température (7-10 °C/min) et un palier de 20 min à une température intermédiaire (115 °C) permet un dégazage progressif des éléments présents dans l'enceinte, en particulier du substrat. Une fois la consigne de température atteinte, un temps d'attente (~ 10 min) est nécessaire afin que la température soit homogène sur le substrat. En effet, le thermocouple étant placé dans la sole en céramique, il est nécessaire de patienter un peu plus longtemps afin que la chaleur diffuse jusqu'au substrat. Enfin, une atmosphère d'argon à la pression requise est introduite, et la consigne de courant au niveau de la cible est appliquée, définissant une vitesse de dépôt mesurée avec la balance à quartz avant chaque dépôt. Lorsque le dépôt de FeGe est terminé, le flux d'argon est arrêté et la température du four diminue à une vitesse lente de 10 °C/min. Lorsque l'échantillon est froid, une couche de protection de 5 nm d'aluminium est déposée. Le protocole de croissance de couches minces de FeGe B20 a été élaboré par variation des paramètres de croissance tels que la température de dépôt, la pression d'argon et les vitesses de dépôts *via* les potentiels appliqués aux cibles. Le protocole a ensuite été optimisé par l'introduction d'une couche fine de Fe, suivant en cela l'exemple de Porter *et al.* [99], et le réajustement des températures et des vitesses de dépôt.

Les premiers dépôts de FeGe ont été réalisés sous une pression d'argon de 3×10^{-3} mbar, à une vitesse proche d'1 Å/s, et à des températures variant entre 350 et 500 °C. Des mesures aux rayons X montrent très clairement que la température de dépôt a une très grande influence sur la formation de l'alliage, ainsi que sur son épitaxie. En effet, on peut voir sur la figure 1.26a que les mesures en angle rasant de trois échantillons déposés à 350 °C, 400 °C et 500 °C sont très différents. Pour plus de clarté, un seul balayage par échantillon est présenté ici, mais plusieurs ont été réalisés à chaque fois, indiquant une structure de type poudre. Le premier montre que cette poudre est composée uniquement

de FeGe monoclinique. Les dépôts les plus chauds présentent des pics de diffraction de FeGe B20, de FeSi B20 ainsi que de Ge, témoins de la démixtion du FeGe et de la diffusion du Fe dans le substrat de Si. L'intensité des pics du FeSi B20 et du Ge augmentent lorsque la température de dépôt augmente, indiquant une démixtion du FeGe et une diffusion du Fe dans le substrat d'autant plus importantes que la température de dépôt est élevée. Cependant, les mesures de diffraction aux grands angles présentées figure 1.26b, ainsi que des mesures asymétriques permettent d'affirmer que les couches sont aussi épitaxiées en partie. En effet, les spectres de diffraction aux grands angles affichent les mêmes pics de diffraction du FeGe B20 et du FeSi B20, mais avec un rapport d'intensités qui ne correspond pas à celui attendu dans le cas d'une poudre. Les raies (111) de ces deux alliages sont particulièrement intenses, indiquant une croissance préférentielle selon la direction $\langle 111 \rangle$ sur le substrat de Si (111). Des mesures asymétriques, non présentées pour ces couches, permettent de confirmer cette direction de croissance. Dans le cas du Ge, la raie (111) étant la plus intense, il n'est pas possible de conclure quant à son épitaxie sans mesures asymétriques. La raie (311) a alors été cherchée et trouvée à un angle de 29.5° par rapport à la normale à la surface, permettant de conclure que le Ge est également épitaxié en partie, avec une direction de croissance selon $\langle 111 \rangle$, et avec deux orientations dans le plan de 0° et 60° par rapport au Si (111) du substrat.

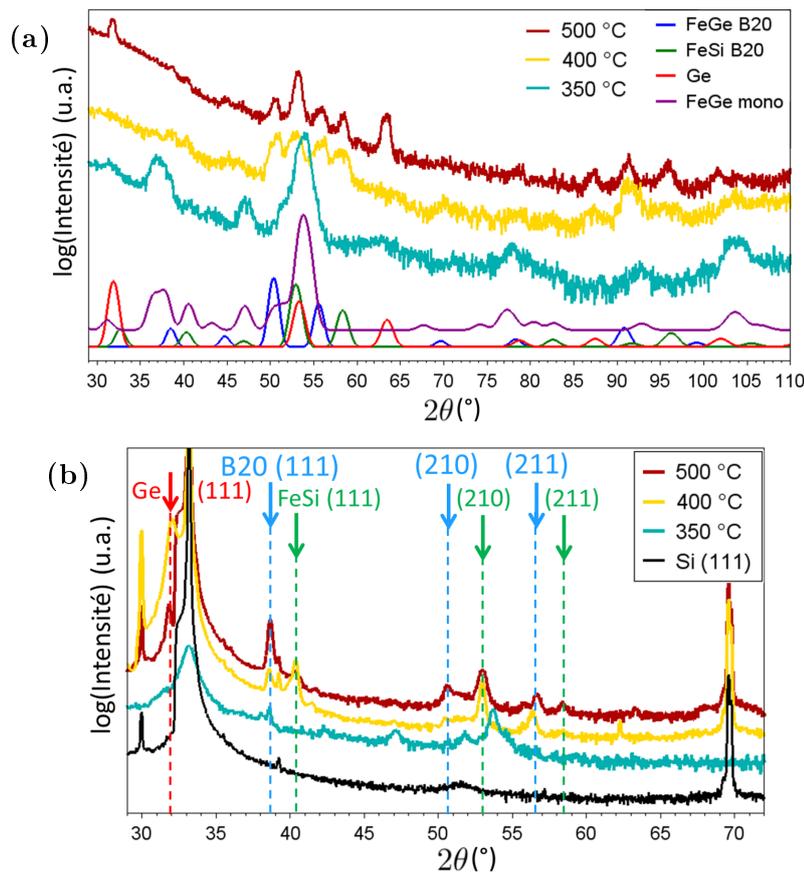


Fig. 1.26 – Diffractions en angle rasant (a) et aux grands angles (b) de 50 nm de FeGe déposé à 350 °C, 400 °C et 500 °C sous une pression d'argon de 3×10^{-3} mbar et à une vitesse de dépôt légèrement inférieure à $1 \text{ \AA}/\text{s}$.

Les surfaces de ces dépôts ont également été observées par microscopie à force atomique (AFM) et microscopie électronique à balayage (MEB). La topographie varie fortement avec la température de dépôt. La couche déposée à 350 °C présente une surface uniforme et plane avec une rugosité de l'ordre du nanomètre, tandis que des grains de 100 nm de haut apparaissent à la surface du dépôt à 500 °C (figure 1.27a). Des mesures EDS réalisées avec le MEB ont permis de mesurer les proportions de Fe et de Ge à une position précise de la surface. L'énergie des électrons a été fixée à 3 keV, permettant d'exciter les raies L_α du Fe et du Ge sans pénétrer trop profondément dans le substrat. L'O, le C, l'Al et le Si apparaissent également sur le spectre à cette énergie, mais en faible quantité. La figure 1.27c présente les analyses chimiques réalisées en les points indiqués sur l'image MEB 1.27b. Il est donc possible d'affirmer que la couche plane uniforme sous les grains est composée de Fe et de Ge en proportions égales (courbe bleu), tandis qu'une très grande quantité de Ge est détectée au niveau des gros grains (courbe violette). Les mesures de diffraction de rayons X analysées précédemment suggèrent que ces grains sont des cristaux de Ge, probablement orientés selon la direction $\langle 111 \rangle$.

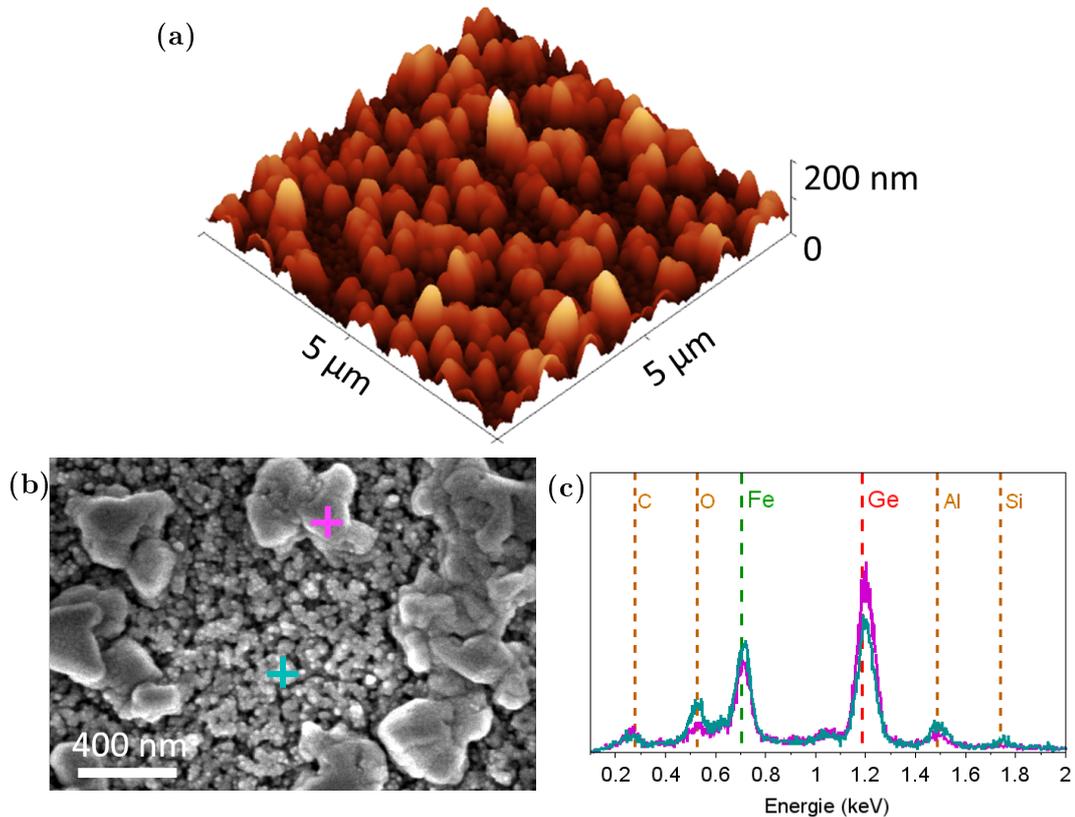


Fig. 1.27 – Images *a)* AFM et *b)* MEB d'une couche de FeGe déposée à 500 °C. Les courbes *c)* présentent les analyses chimiques réalisées à l'EDS en les points indiqués sur la figure *b)*.

Ainsi, il est nécessaire de chauffer au-dessus de 350 °C pour obtenir la phase cubique du FeGe, mais une température trop élevée favorise la démixtion du FeGe et la formation de cristaux de FeSi B20 et de Ge plutôt que de FeGe B20. Il est donc indispensable d'agir sur d'autres paramètres que la température pour optimiser la formation de FeGe B20.

La pression d'argon et la vitesse de dépôt ont alors été modifiées. Les mesures en incidence rasante et aux grands angles représentées sur la figure 1.28 montrent une augmentation de l'intensité des pics du FeGe B20 et une diminution des pics de FeSi et de Ge lorsque la pression d'argon est doublée ($14 \text{ sccm} = 3 \times 10^{-3} \text{ mbar}$, $32 \text{ sccm} = 5.9 \times 10^{-3} \text{ mbar}$) et que la vitesse de dépôt est réduite de moitié (à 32 sccm , $80 \text{ mA} \rightarrow 1.08 \text{ \AA/s}$, $40 \text{ mA} \rightarrow 0.48 \text{ \AA/s}$). L'augmentation de l'intensité des pics de FeGe dans le cas des dépôts avec un flux d'Ar de 32 sccm est sous-évaluée sur les figures 1.28 à cause d'une différence d'épaisseur des couches minces. La couche déposée à basse pression d'Ar est épaisse de 50 nm tandis que les deux autres ont des épaisseurs de 30 nm .

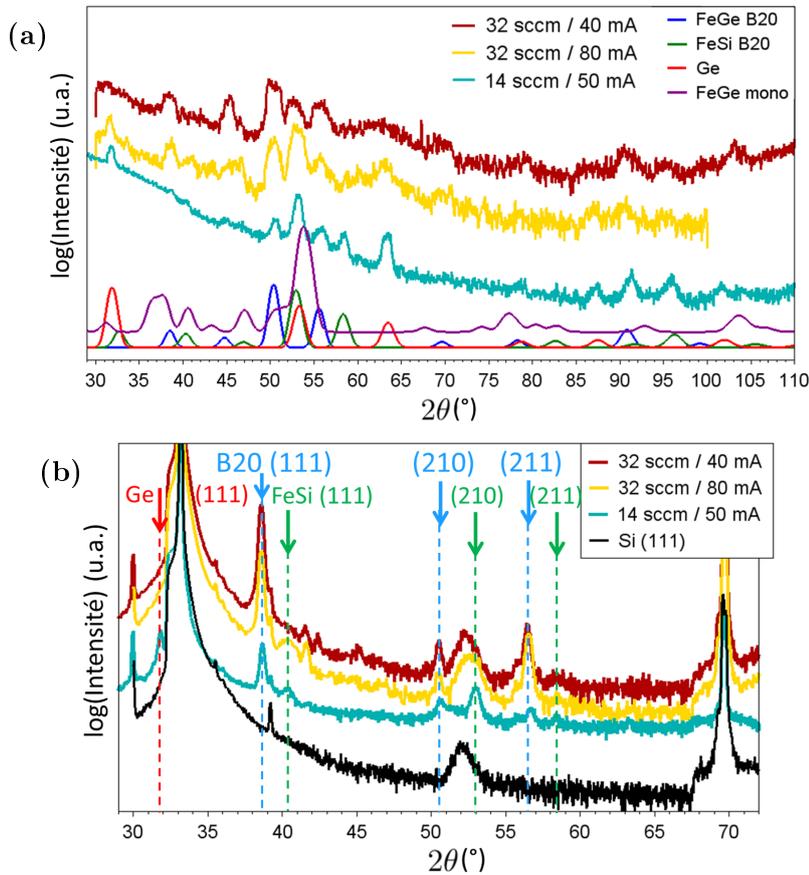


Fig. 1.28 – Diffractions en angle rasant (a) et aux grands angles (b) de couches de FeGe déposées $500 \text{ }^\circ\text{C}$ sous des pressions d'argon et à des vitesses de dépôt différentes. (Les valeurs en sccm correspondent à une mesure du flux d'argon, et les valeurs en mA sont les consignes de tension appliquées à la cible de FeGe.)

Ainsi, une pression d'argon plus élevée et une vitesse de dépôt plus faible permettent de réprimer nettement la démixtion du FeGe en faveur de la formation du cristal B20 que ce soit en poudre ou de façon épitaxiale selon la direction $\langle 111 \rangle$.

Afin d'améliorer encore l'épitaxie du FeGe B20, une couche fine de Fe a été ajoutée avant le dépôt de FeGe. Le rôle de cette couche de Fe est de former un alliage de FeSi entre le substrat et le FeGe afin d'empêcher la diffusion du Fe dans le Si et d'amorcer la

croissance de la phase cubique du FeGe. En effet, il a été montré que pour 5 à 10 Å de Fe déposé sur Si (111) à une température entre 350 et 500 °C, le FeSi B20 se forme [106]. Nous avons alors réalisé différentes couches de FeGe déposées à 350 °C sur 1, 2 et 5 nm équivalent de Fe. Ce Fe a été déposé sous une pression d'argon de 5.9×10^{-3} mbar et à une vitesse de 0.52 Å/s. Les 30 nm de FeGe ont été déposés dans les mêmes conditions que décrites précédemment. Dans les cas où 1 et 2 nm de Fe ont été déposés, les mesures en angle rasant à différents azimuts montrent que les couches sont composées en partie de poudre, ce qui n'est pas le cas pour 5 nm de Fe déposé. De plus, la poudre observée pour 1 nm de Fe est une poudre de FeGe monoclinique, tandis qu'elle est composée principalement de FeGe B20 lorsque 2 nm de Fe sont déposés (voir figure 1.29a). Enfin, les balayages en $\theta/2\theta$ montrent une bonne épitaxie du FeGe B20 (111) pour des dépôts fins de Fe. Dans le cas de 5 nm de Fe déposés, l'alliage épitaxié observé est le Fe_3Ge_2 (201). Il est alors évident que la proportion importante de Fe dans ce cas ne permet pas de stabiliser un alliage de Fe-Ge 50-50.

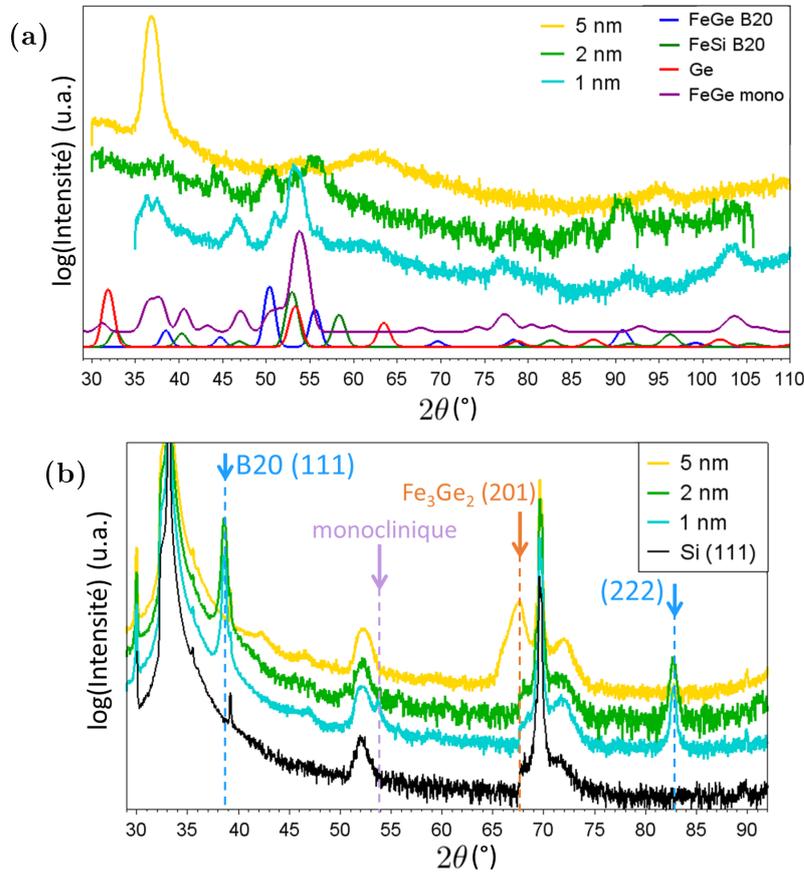


Fig. 1.29 – Diffractions *a)* en angle rasant et *b)* aux grands angles de couches de FeGe déposées à 350 °C sur 1, 2 et 5 nm de Fe.

La figure 1.30a présente les balayages en $\theta/2\theta$ et en ω réalisés autour de la raie (111) du FeGe B20. L'intensité du pic est plus grande dans le cas d'une couche de Fe de 2 nm. Une épaisseur de Fe plus grande entraîne donc une formation plus importante de FeGe B20 épitaxié. Le tableau 1.30b reporte les valeurs de largeur à mi-hauteur des pics en 2θ et en ω des raies (111) et (222) sur les deux mêmes échantillons. Les pics en 2θ possèdent

la même largeur à mi-hauteur et indiquent une taille de cristallites de l'ordre de 12.5 nm dans les deux cas. Les balayages en ω , ou *rocking curves*, montrent quant à eux une forte disparité. La largeur de pic des *rocking curves* varie avec la désorientation des plans atomiques, ou mosaïcité, ainsi qu'avec la taille des cristallites (ici identique dans les deux cas). Les pics mesurés dans le cas d'une couche de Fe de 1 nm sont nettement plus fins et sont donc la preuve d'une meilleure orientation des plans cristallins entre eux. Une épaisseur de Fe plus fine est alors préférable.

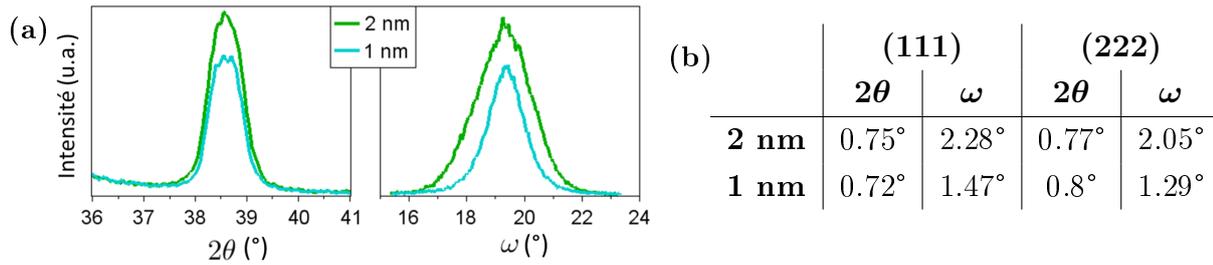


Fig. 1.30 – *a)* Balayages en $\theta/2\theta$ et en ω autour de la raie (111) du FeGe B20 après dépôt de 1 et 2 nm de Fe. *b)* Largeurs à mi-hauteur des pics en 2θ et en ω mesurés pour les raies (111) et (222) dans les cas de 1 et 2 nm de Fe.

3) Protocole expérimental retenu

Après quelques ajustements des conditions de dépôts, les paramètres optimaux retenus pour l'épitaxie du FeGe B20 sur Si (111) sont les suivants :

| | Pression Ar | Épaisseur | Vitesse de dépôt | Température |
|-------------|---------------------------|-------------|------------------|-------------|
| Fe | 5.9×10^{-3} mbar | 0.7 nm | 0.25 Å/s | 450 °C |
| FeGe | 5.9×10^{-3} mbar | 30 - 150 nm | 0.48 Å/s | 375 °C |

Tab. 1.6 – Conditions de dépôt retenues du FeGe par pulvérisation cathodique

Avec le même protocole, des couches minces de FeGe de différentes épaisseurs ont été développées. Des mesures de diffractions et de réflectivités de rayons X ont été réalisées afin de confirmer la bonne qualité de nos couches quelle que soit l'épaisseur déposée. Les diffractions en angle rasant (figure 1.31a) dévoilent une faible quantité de poudre de FeGe B20, et l'absence de poudre de FeGe monoclinique, de FeSi et de Ge. Les mesures en $\theta/2\theta$ (figure 1.31b) témoignent de l'unique direction de croissance $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20. Les ajustements des réflectivités (figure 1.31c) permettent d'extraire une rugosité d'interface de l'ordre de 4 Å entre le substrat et le FeSi, de 6 Å entre le FeSi et le FeGe, et une rugosité du FeGe de 15 Å.

Afin de caractériser complètement la croissance du FeGe B20 sur substrat de Si (111) par pulvérisation cathodique, des raies asymétriques ont été cherchées. Les raies (211), (123) et (410), accessibles par simple balayage en φ , sont représentées sur la figure 1.32 pour 30, 70 et 150 nm de FeGe déposé. Le FeGe B20 étant cubique et avec une direction

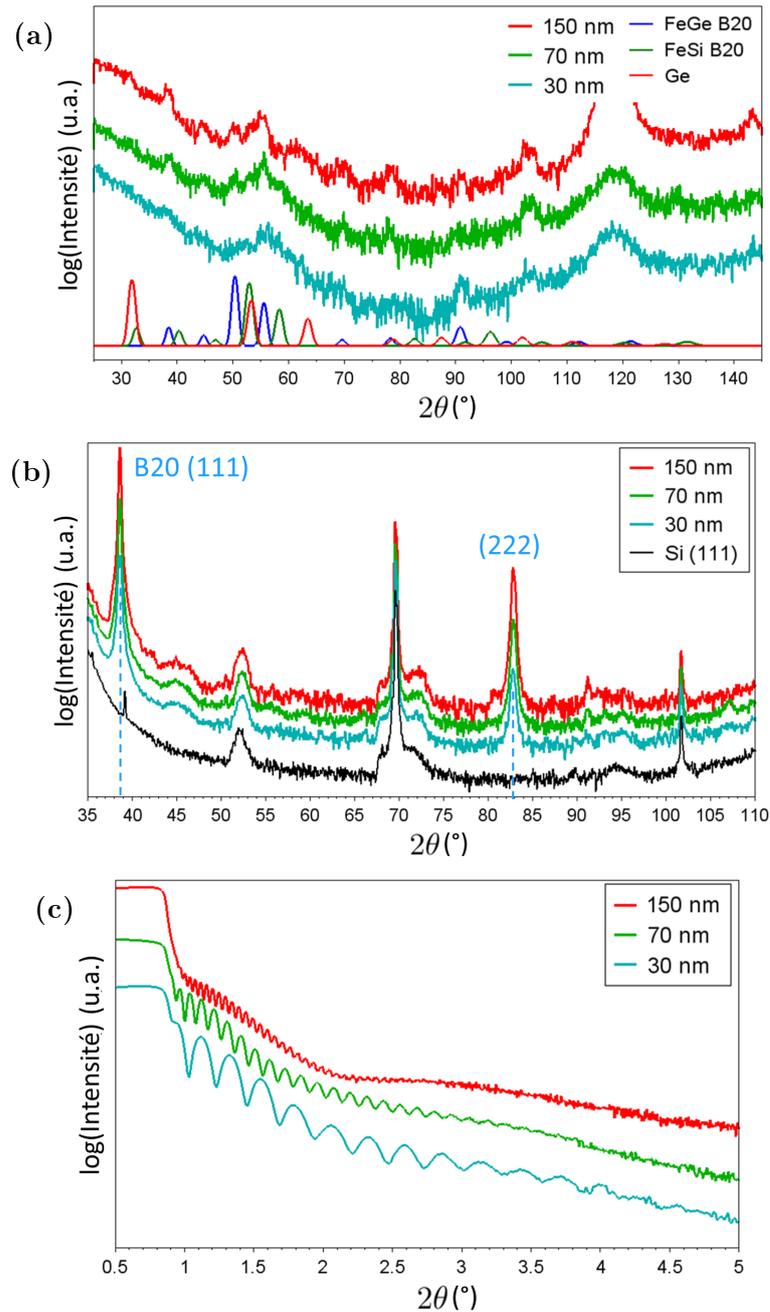


Fig. 1.31 – Diffractions *a)* en angle rasant et *b)* aux grands angles, et *c)* réflectivités de couches de FeGe de 30, 70 et 150 nm d'épaisseur, déposées selon le protocole détaillé dans le tableau 1.6. Le spectre de diffraction du substrat seul (en noir) a été mesuré afin d'extraire les pics de diffraction de la couche uniquement.

de croissance selon la direction $\langle 111 \rangle$, une symétrie 3 est attendue, c'est-à-dire avec une périodicité de 120° selon l'azimut φ . Cependant, la raie (211) montre une périodicité de 60° (figure 1.32a). Dans le cas de la raie (123) du FeGe, la raie (331) du substrat de Si est interceptée, brisant cette symétrie 6 apparente (figure 1.32b). Les balayages en φ de la raie (410) (et ses multiplicités), permettent de conclure que cette symétrie 6 apparente

en a) est en réalité la conséquence de deux directions de croissance du FeGe B20 : $\langle 111 \rangle$ et $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$. En effet, les raies (041) et (140) (à 27.8° l'une de l'autre) ayant des facteurs de structure différents, leurs intensités sont différentes. Elles sont donc aisément distinguables entre elles. Ces deux directions de croissance sont en effet différentes puisque la phase B20 est une structure cristalline chirale (visible sur la figure 1.4b). Enfin, ces mesures de raies asymétriques permettent d'observer une augmentation de l'intensité des pics non proportionnelle à l'épaisseur de FeGe déposé (voir figure 1.33). En effet, plus l'épaisseur du dépôt est importante, meilleure est la cristallinité du FeGe B20.

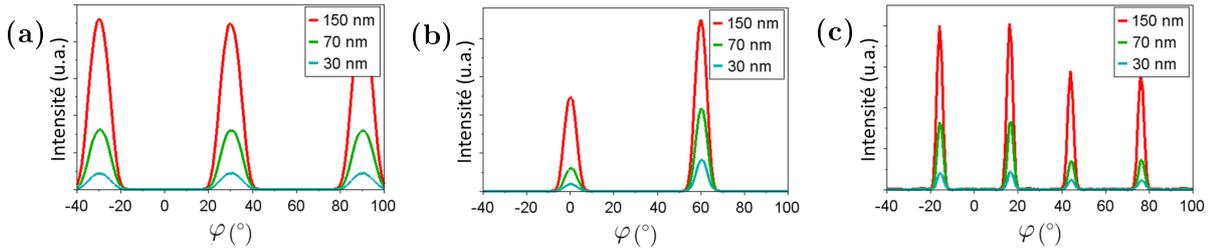


Fig. 1.32 – Balayages en φ des raies asymétriques a) (211) ($2\theta = 55.6^\circ$, $\omega = 8.3^\circ$), b) (123) ($2\theta = 90.8^\circ$, $\omega = 23.2^\circ$) et c) (410) ($2\theta = 103.4^\circ$, $\omega = 6.1^\circ$) du FeGe B20 (111) pour 30, 70 et 150 nm de dépôt.

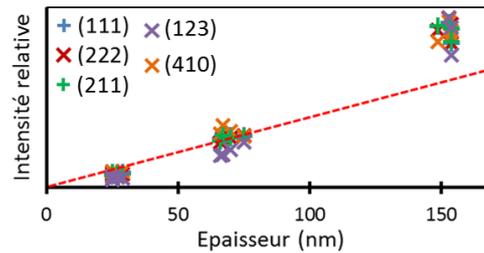


Fig. 1.33 – Variation de l'intensité des différentes raies de diffraction du FeGe B20 en fonction de l'épaisseur du dépôt mesurée par réflectivité de rayons X. La ligne rouge est un guide pour les yeux afin de mettre en évidence la non linéarité de la dépendance en épaisseur des intensités.

En outre, des figures de pôles ont été réalisées pour trois familles de pics de Bragg : (111) à $2\theta = 38.5^\circ$, (210) à $2\theta = 50.4^\circ$ et (211) à $2\theta = 55.6^\circ$ (voir figure 1.34). L'azimut φ varie de -130° à 130° , permettant de couvrir largement l'espace réciproque qui est de symétrie 3 dans le cas du Si (111). Sur la première figure de pôles, la raie (111) et ses équivalentes sont mesurées (figure 1.34a). Au centre sont visibles les raies (111) et $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$. Les pics de Bragg $(11\bar{1})$ et $(\bar{1}\bar{1}1)$ et leurs permutations sont à un angle de déclinaison χ de 70.5° des raies (111) et $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ respectivement, et à 120° les unes des autres en azimut, avec un décalage de 60° entre les deux familles de pics. On distingue également le pied des raies (111) du substrat de Si ($2\theta = 33.1^\circ$) à $\varphi = 30$ et 270° . On remarque à nouveau la rotation de 30° entre le substrat et la couche de FeGe. Une tâche supplémentaire est observée à $\chi = 35^\circ$ et $\varphi = 260^\circ$. Cette tâche est un artefact dû au monocristal désaxé de Si sur lequel est collé l'échantillon mesuré. La figure de pôles 1.34b, réalisée à $2\theta = 50.4^\circ$, présente la raie (210) à $\chi = 39.2^\circ$ et ses permutations tous les 60° en φ . L'intensité plus forte des

tâches à $\varphi = 30$ et 270° est due à la proximité des raies (220) du Si. Les raies ($2\bar{1}0$) et ($\bar{2}10$) à 75° de (111) et ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) respectivement, sont également visibles. De la même façon que pour la raie (410), les raies ($2\bar{1}0$) et ($0\bar{1}2$) n'ont pas le même facteur de structure et sont à 81.8° l'une de l'autre en φ . Enfin, la figure 1.34c présente les raies (211) et ($2\bar{1}\bar{1}$) à $\chi = 19.5^\circ$, ($2\bar{1}1$) et ($\bar{2}1\bar{1}$) à $\chi = 61.9^\circ$, ainsi que leurs permutations. Les raies (220) du Si sont également visibles ici.

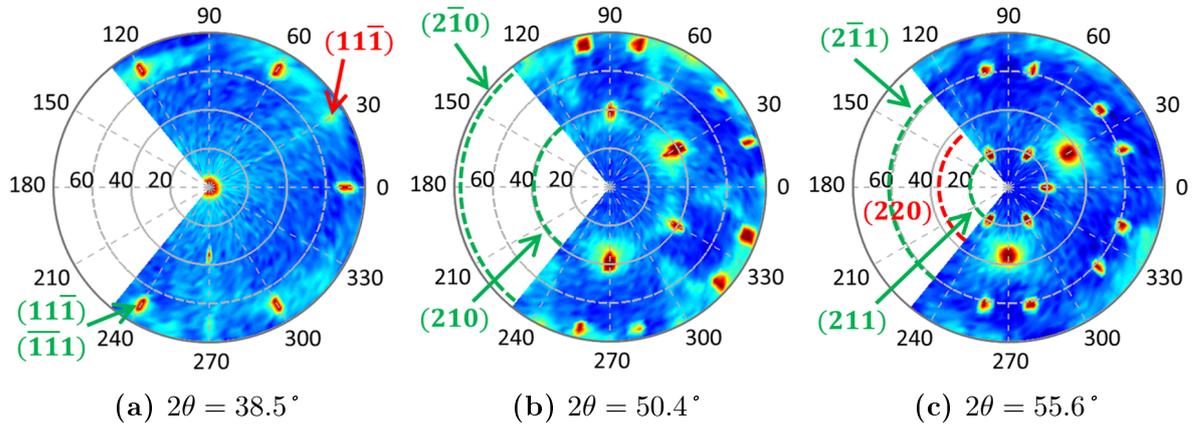


Fig. 1.34 – Figures de pôles d'une couche typique de FeGe crûe par pulvérisation cathodique sur substrat de Si (111) pour les pics de Bragg a) (111), b) (210) et c) (211) de la phase B20. Sur l'axe horizontal sont reportées les valeurs de l'angle de déclinaison χ allant de 0 à 80° , 0° étant la normale au plan de l'échantillon et 90° l'axe dans le plan. Autour du disque sont les valeurs de l'azimut φ variant de -130° à 130° . Les raies de Bragg du FeGe B20 et du Si sont indiquées en vert et en rouge respectivement.

Ces figures de pôles permettent donc de confirmer la bonne épitaxie du FeGe B20 sur Si (111) selon les directions $\langle 111 \rangle$ et $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$.

Les mesures de réflectivités ont permis d'apprécier le bon état d'interface de nos couches d'un point de vue macroscopique. Des mesures de MET en coupe offrent la possibilité de visualiser ces interfaces plus précisément. Afin de réaliser ces mesures, un échantillon a été aminci par polissage mécanique au tripode. Cet amincissement permet de préserver la structure cristalline de la couche, sans risque d'amorphiser la surface. L'échantillon utilisé pour ces mesures n'a pas été élaboré suivant le dernier procédé de croissance mis au point, mais les spectres de diffraction de rayons X mesurés sur cet échantillon témoignent d'une bonne croissance du FeGe B20. Les premières images ont été réalisées en mode METB-HAADF (HAADF = *high angular annular dark-field*) à grande échelle (figure 1.35). En mode HAADF, le détecteur est un anneau qui reçoit les électrons diffusés inélastiquement. Le contraste est alors formé par la différence de nombres atomiques des éléments de la couche mince observée, les atomes lourds apparaissant en clair. Dans notre cas, le substrat de Si apparaît donc en sombre et le FeGe en clair.

On remarque ici que l'interface présente une structure particulière. Tout d'abord, au voisinage du substrat, une couche fine (~ 4 nm) de couleur intermédiaire apparaît (indiquée par la flèche verte). Le contraste observé est cohérent avec la formation de

l'alliage FeSi B20 attendu, formés d'atomes plus lourds que le substrat de Si et plus légers que l'alliage de FeGe. La couche de FeGe (en clair), semble séparée en deux. En effet, une zone très sombre (indiqué par la flèche grise), témoignant de la présence de vide ou de matériau amorphe, est présente entre une couche très fine proche de l'interface et la couche supérieure. Un désaccord de maille important de -4.9 % entre le FeSi B20 et le FeGe B20 est probablement à l'origine de cette déchirure proche de l'interface, séparant une couche très fine de FeGe B20 fortement contrainte, et une couche épaisse de FeGe B20 relaxé. L'épaisseur de cette zone sombre étant *a priori* indépendante de l'épaisseur de FeGe déposé, cela pourrait expliquer l'augmentation non linéaire de l'intensité des pics de diffraction de rayons X avec l'épaisseur de la couche mince de FeGe. On remarque d'autre part que les grains semblent s'étendre sur toute l'épaisseur de la couche. Les joints de grains visibles en METB apparaissent également en AFM, sur le même échantillon, mais aussi sur les couches réalisées suivant les conditions de dépôt optimisées (figure 1.36).

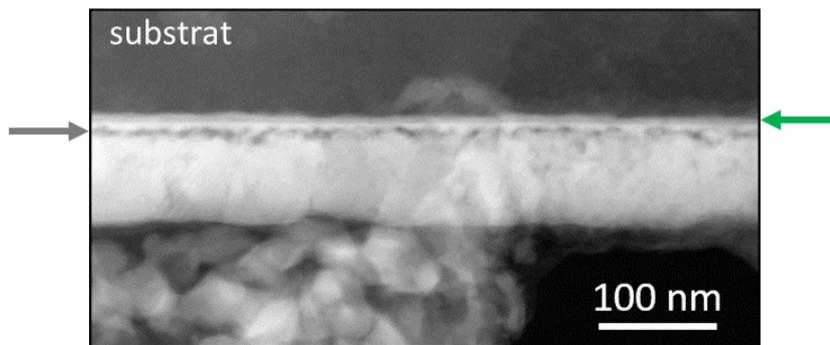


Fig. 1.35 – Image METB de l'interface d'une couche de FeGe sur Si (111).

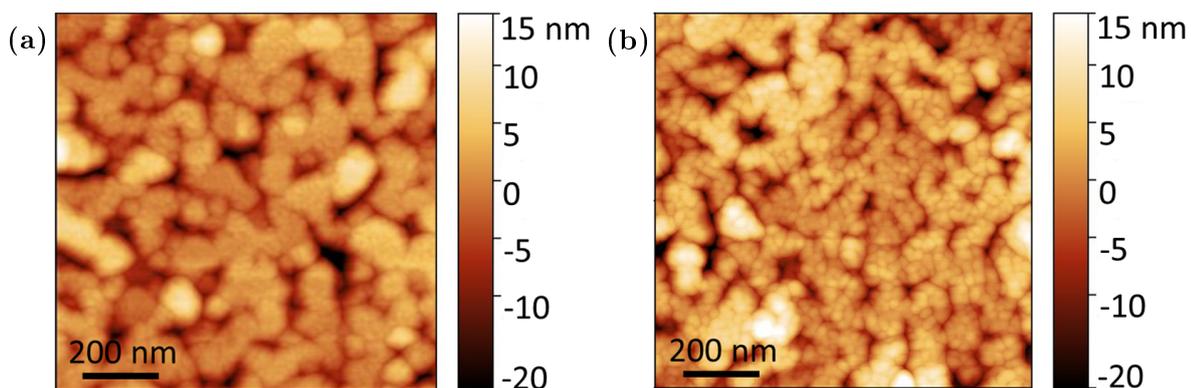


Fig. 1.36 – Images AFM réalisées a) sur le même échantillon que pour les mesures MET-HR et METB, b) ainsi que sur une couche déposée selon les conditions décrites dans le tableau 1.6.

Des mesures de microscopie en haute résolution ont alors été réalisées afin de déterminer l'arrangement cristallin de l'interface. Une image MET-HR est présentée figure 1.37a. Sur cette image le Si apparaît en clair. Les colonnes d'atomes se distinguent aisément sur cette image. Une transformée de Fourier de cette image permet d'accéder aux pics de Bragg des cristaux présents (figure 1.37b). Les pics du Si ont été marqués en rouge. Les

pics restant correspondent parfaitement avec la croissance (111) du FeGe B20 avec une rotation de 30° par rapport au Si. Pour plus de clarté, la figure 1.37c montre la superposition des réseaux de Bravais du Si ($\bar{1}10$) et du FeGe B20 ($\bar{1}2\bar{1}$), correspondant à la transformée de Fourier de l'image MET-HR. Nous ne sommes malheureusement pas parvenus à identifier une phase d'un alliage de Fe-Si à l'interface entre le substrat et la couche de FeGe B20.

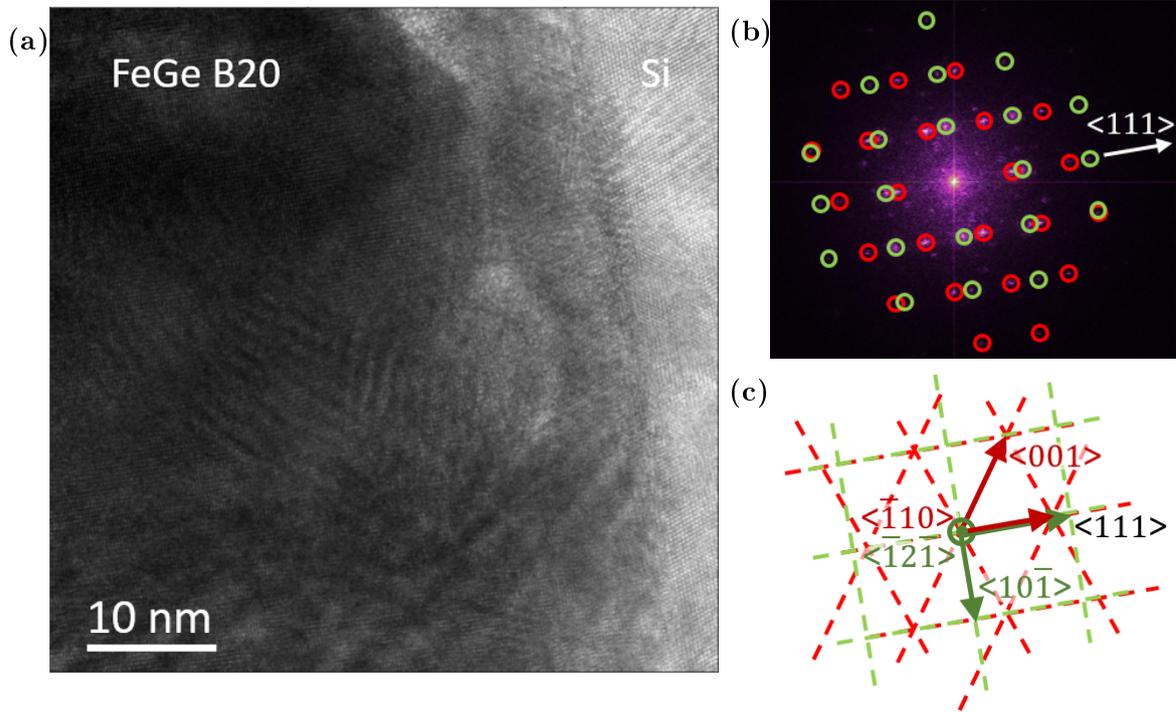


Fig. 1.37 – *a)* Image MET-HR de l'interface d'une couche de FeGe sur Si (111). *b)* Transformée de Fourier de l'image MET-HR avec les pics de Bragg du Si marqués en rouge et ceux du FeGe B20 en vert. La flèche blanche indique la direction $\langle 111 \rangle$ des deux cristaux. *c)* Superposition des réseaux de Bravais du Si (en rouge) et du FeGe B20 (en vert) vus selon les directions $\langle \bar{1}10 \rangle$ du Si et $\langle \bar{1}2\bar{1} \rangle$ du FeGe.

En conclusion, un protocole de croissance de couches minces de FeGe B20 a été développé avec succès. Le substrat de Si (111) non dopé traité avec le HNO_3 puis avec le HF semble être le meilleur pour la croissance de ces couches. La diffusion d'une couche mince de Fe à l'interface avec le substrat permet d'optimiser la croissance du FeGe B20 et d'améliorer considérablement son épitaxie. Nous avons également remarqué qu'une variation minime de la température de dépôt (de Fe et de FeGe) peut améliorer ou dégrader drastiquement la couche. Enfin, les dépôts lents à haute pression d'argon ont démontré un intérêt incontestable dans la croissance du FeGe B20. Cependant, la coexistence des deux directions de croissance $\langle 111 \rangle$ et $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$ entraîne la coexistence des deux chiralités du cristal B20. Cela pourrait compromettre la formation de skyrmions puisque le sens de rotation des spins dépend de la direction du vecteur de DMI, qui dépend lui-même de la chiralité du cristal. Cette piste sera explorée plus précisément dans la suite du manuscrit.

IV Détermination des multicouches [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2]_n

Les multicouches de type [ML1/FM/(ML2 ou Ox)]_n (ML = métal lourd, FM = ferromagnétique, Ox = oxyde) déposées par pulvérisation cathodique ont fait récemment l'objet de très nombreuses recherches [26, 27, 87]. La possibilité d'ajuster aisément les différentes interactions magnétiques en jeu telles que l'interaction d'échange, l'anisotropie et l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) font de ces systèmes de très bons candidats pour la spintronique. En effet, il est acquis que l'anisotropie magnétique de multicouches varie en fonction des différents paramètres de croissance tels que les épaisseurs de matériaux déposés ou le nombre de répétitions. La température de dépôt et/ou de recuit affecte aussi considérablement l'anisotropie magnétique des systèmes en multicouches. Par exemple, un recuit aura pour effet de rendre plus abruptes les interfaces entre le Co et l'Au immiscibles et ainsi d'augmenter l'anisotropie perpendiculaire [107]. L'anisotropie magnétique dépend également des vitesses de dépôt, et dans le cas de la pulvérisation cathodique, de la nature et la pression du gaz utilisé pour former le plasma [92, 108]. D'autre part, l'aimantation à saturation, qui détermine l'amplitude du champ démagnétisant, dépend de la nature du matériau ferromagnétique choisi ainsi que des épaisseurs déposées. L'utilisation du Co dans ces systèmes est très répandue car il possède un moment magnétique plus faible que celui du Fe, permettant ainsi d'amoinrir l'intensité du champ démagnétisant dont les effets s'opposent à ceux de l'anisotropie perpendiculaire [92]. Cela permet alors d'obtenir des systèmes à aimantation perpendiculaire pour des épaisseurs de matériau ferromagnétique plus importantes, et donc d'avoir une plus grande marge de manœuvre pour ajuster l'intensité des interactions magnétiques. Enfin, l'intensité et le signe de la DMI dépendent du couple FM/ML choisi. Et puisque dans ces systèmes la DMI agit aux interfaces uniquement [109], il est en principe possible de contrôler la contribution de certaines interactions magnétiques sans modifier celle de la DMI (l'aimantation à saturation et les effets de champ démagnétisant par exemple dépendent des épaisseurs de matériaux déposés). Les multicouches à interfaces non symétriques sont alors d'excellents candidats pour des expériences de transports de spins mettant en jeu la DMI et les skyrmions.

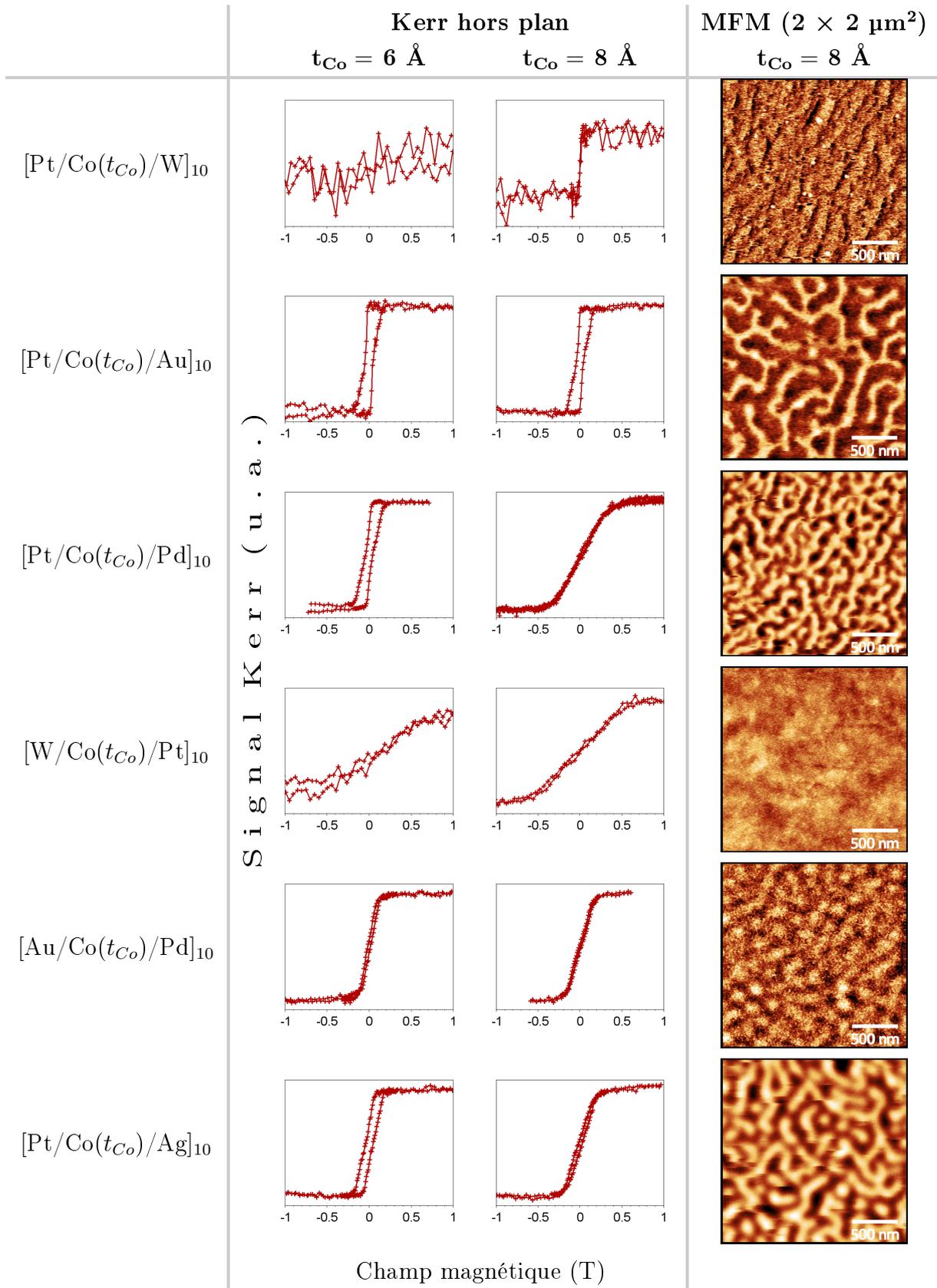
A. Choix des métaux lourds

L'intensité et le signe de la constante de DMI D_i dépendant du couple ML_i /FM, les systèmes du type [ML₁/Co/ML₂]_n autorisent deux contributions indépendantes de DMI (D_1 et $-D_2$). L'effet global de la DMI étant la somme de la contribution des deux interfaces ($D_{tot} = D_1 - D_2$), il est nécessaire que les DMI créées par les deux interfaces soient différentes afin d'obtenir une DMI effective non nulle. Ces systèmes offrent la possibilité d'augmenter considérablement l'effet global de la DMI en choisissant des métaux lourds tels que les DMI des deux interfaces soient de signes opposés. L'étude des systèmes à DMI d'interface étant récente, peu de données fiables existaient au début de ma thèse. Des échantillons du type [ML1 (10 Å)/Co (t_{Co})/ML2 (10 Å)]_n, avec ML = Au, Pt, Pd, ou W, $t_{Co} = 6$ Å ou 8 Å et $n = 6$ ou 10, ont alors été réalisés par pulvérisation cathodique, avec une pression d'argon de 3×10^{-3} mbar et une vitesse de dépôt de l'ordre de 1 Å /s, sur

des substrats de silicium oxydé. Dans chacun des cas, une couche de 5 nm d’Au ou de Pt a été déposée avant la croissance des multicouches pour améliorer l’état des interfaces, ainsi qu’une couche de 3 nm afin de protéger les couches de l’oxydation.

Une intensité comparable des différentes interactions magnétiques est primordiale pour la formation de skyrmions. En particulier, l’aimantation du système doit être perpendiculaire, mais l’anisotropie ne doit pas dépasser les autres interactions. De plus, un champ coercitif faible est préférable pour des expériences de transfert de spins. Des cycles d’aimantation hors plan ont alors été mesurés par effet Kerr à température ambiante sur chacun de ces échantillons. Des images de microscopie à force magnétique (MFM) ont également été réalisées, à température ambiante et à champ nul, afin de visualiser les motifs magnétiques de chacun de ces échantillons. L’effet Kerr magnéto-optique permet de mesurer des cycles d’aimantation d’un échantillon, mais ne permet pas d’accéder à une mesure quantitative de l’aimantation. La microscopie à force magnétique permet de visualiser les domaines magnétiques à aimantation perpendiculaire. Ces deux techniques seront décrites plus précisément dans le chapitre suivant. L’association de ces deux techniques permet d’obtenir une caractérisation préliminaire des multicouches afin de guider notre choix de systèmes à étudier. Le tableau 1.7 présente les mesures Kerr des différents systèmes pour $t_{Co}=6$ et 8 \AA , et $n=10$, et les images MFM (réalisées après saturation perpendiculaire au plan) de ces mêmes systèmes pour $t_{Co}=8 \text{ \AA}$ et $n=10$. Dans tous ces cas, le nombre de répétition (6 ou 10) n’apporte pas de changements importants dans les mesures magnétiques, et un nombre de répétition plus grand permet d’obtenir un signal magnétique plus intense.

Les mesures Kerr révèlent que les multicouches $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Au}]_n$, $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ et $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ag}]_n$ possèdent des cycles d’aimantation hystérétiques avec une large hystérèse, à l’encontre des recommandations pour des expériences de transfert de spins pour lesquelles un champ coercitif faible est requis. On remarque par ailleurs que le système $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{W}]_n$ est magnétique à température ambiante pour une épaisseur de Co strictement supérieure à 6 \AA . Ce phénomène peut s’expliquer par la formation d’un alliage CoW, non magnétique, aux interfaces. Des mesures SQUID (non présentées ici) révèlent que ces systèmes possèdent une température de transition de l’ordre de 170 K pour $t_{Co} = 6 \text{ \AA}$. Les systèmes $[\text{W}/\text{Co}/\text{Pt}]_n$ présentent quant à eux une anisotropie perpendiculaire faible, avec un champ de saturation supérieur à 500 mT . On remarque alors que l’ordre des couches déposées est également un critère important pour la manipulation des interactions magnétiques. En effet, en pulvérisation cathodique, les interfaces créées par le bombardement d’atomes lourds sur une couche mince d’un métal léger ne sont pas équivalentes à celles créées par le dépôt du même métal léger sur une couche mince de métal lourd. Enfin, les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ ont un champ coercitif très faible et une rémanence quasi-nulle, avec un champ de saturation de l’ordre de 200 mT . Les mesures Kerr suggèrent ainsi le potentiel des multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ pour la formation de skyrmions. Les images MFM révèlent la présence d’une texture magnétique en domaines entrelacés pour les systèmes $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Au}]_n$, $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$, $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ et $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ag}]_n$. La petite taille des domaines, de l’ordre de 100 nm , fait de ces systèmes des candidats intéressants pour des applications d’enregistrement magnétique. Les multicouches $[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}$ en particulier présentent de nombreuses bulles magnétiques. Dans le cas des multicouches $[\text{W}/\text{Co}/\text{Pt}]_n$, aucun motif magnétique n’est observé, témoin d’une aimantation dans le plan, conforme aux mesures Kerr présentées précédemment. Enfin, alors que le



Tab. 1.7 – Cycles d'hystérésis hors plan mesurés par effet Kerr polaire à température ambiante et images MFM à champ nul de différents systèmes du type [ML1(10 Å)/Co(t_{Co})/ML2(10 Å)]₁₀.

cycle d'hystérésis hors plan du $[\text{Pt}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{W}(10 \text{ \AA})]_{10}$ semble indiquer une anisotropie perpendiculaire forte, les images MFM présentent un contraste faible, suggérant une aimantation dans le plan. Ce système fera l'objet d'études plus approfondies par la suite. L'analyse des images MFM permet alors de confirmer le potentiel des multicouches $[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}$ pour l'observation de skyrmions à température ambiante.

L'ensemble de ces systèmes a été caractérisé par diffraction de rayons X. La figure 1.38 présente les mesures de réflectivité des multicouches $\text{SiOx}/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$. L'ajustement de la courbe de réflectivité permet d'extraire une rugosité d'interface de $6 \pm 1.5 \text{ \AA}$. L'interdiffusion au niveau des interfaces n'est donc pas négligeable en comparaison de l'épaisseur des couches déposées. La rugosité et l'interdiffusion des interfaces peuvent avoir un effet important sur l'aimantation du système ainsi que sur son anisotropie et l'intensité de la DMI. En particulier, l'interdiffusion aux interfaces peut entraîner la formation d'alliages dont les caractéristiques magnétiques peuvent varier considérablement. Par exemple, l'alliage CoW est non magnétique, alors que l'alliage CoPt possède les caractéristiques d'un matériau ferromagnétique dur.

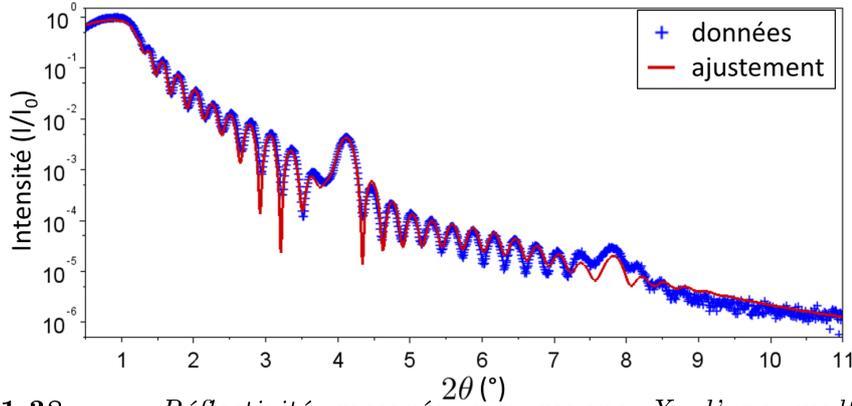


Fig. 1.38 – Réflectivité mesurée aux rayons X d'une multicouche $\text{SiOx}/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$

D'autre part, des calculs *ab initio* des constantes de DMI pour différents couples ML/Co [110] renforcent l'hypothèse que les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ seraient un bon candidat pour des expériences de manipulation de skyrmions. En effet, les calculs *ab initio* prévoient une DMI totale de $0.87 - (-0.38) = 1.25 \text{ mJ/m}^2$, légèrement inférieure à la valeur de DMI prévue pour le système $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ir}]_n$ dans lequel des skyrmions ont déjà été identifiés à température ambiante [87] :

| FM/ML | Co/Pt | Co/Pd | Co/Ir | Co/Au |
|-----------------------------|-------|-------|-------|-------|
| D (mJ/m²) | 2.57 | 0.87 | -0.27 | -0.38 |

Tab. 1.8 – Valeurs de constantes de DMI pour certains couples ML/Co déterminées par calculs *ab initio* [110].

Ainsi, les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ sont potentiellement d'excellents candidats pour la formation de skyrmions isolés, et feront donc l'objet d'études plus approfondies. D'autre part, les multicouches $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{W}]_n$, qui présentent un comportement inexplicable au cours de ces mesures préliminaires, seront également succinctement explorées par la suite.

B. Développement et caractérisation des multicouches [Au/Co/Pd]_n

1) Quelle épaisseur de cobalt ?

Dans les systèmes en multicouches, l'énergie d'anisotropie magnétique effective du système K_{eff} est composée d'un terme surfacique K_S et d'un terme volumique K_V selon $K_{eff} = K_V + K_S/t$, avec t l'épaisseur de matériau ferromagnétique. Il a été montré à plusieurs reprises que des multicouches du type [Co/ML]_n (avec ML = Au, Pt, Pd, etc.) sont des systèmes à forte anisotropie perpendiculaire [107, 111]. Dans ce cas, l'anisotropie perpendiculaire est, en l'absence d'anisotropie magnétocristalline, d'origine interfaciale, c'est-à-dire $K_S > 0$. À cette anisotropie surfacique s'ajoute un terme d'anisotropie volumique. Celui-ci est la somme de l'anisotropie magnétocristalline, qui favorise une aimantation dans la direction $\langle 111 \rangle$ dans le cas du cobalt, et de l'énergie dipolaire, ou anisotropie de forme, très forte dans les films minces. Dans le cas des couches minces l'anisotropie de volume tend donc à coucher l'aimantation dans le plan, c'est-à-dire $K_V < 0$. Il existe alors une épaisseur critique du matériau ferromagnétique en deçà de laquelle la contribution d'anisotropie d'interface surmonte la contribution volumique et résulte en une aimantation perpendiculaire. On s'attend alors à observer une diminution de l'anisotropie effective des multicouches [Au/Co/Pd]₁₀ avec l'augmentation de l'épaisseur de Co.

Des cycles d'aimantation hors plan et dans le plan des multicouches AuTa(8 %) * (55 Å)/[Au(10 Å)/Co(t_{Co})/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å), avec $t_{Co} = 6, 8, 10$ Å ont alors été mesurés afin d'extraire l'anisotropie magnétique effective en fonction de l'épaisseur de Co déposée. La figure 1.39a présente les cycles d'hystérésis hors plan mesurés par effet Kerr polaire.

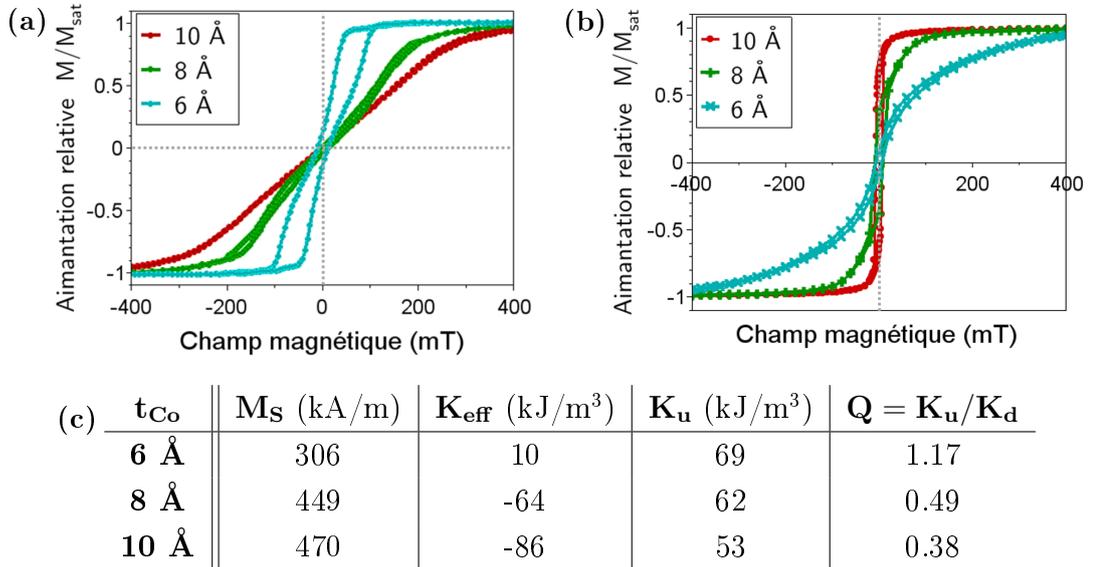


Fig. 1.39 – Cycles d'hystérésis de multicouches AuTa(8 %)(55 Å)/[Au(10 Å)/Co(t_{Co})/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) a) hors plan mesurés par effet Kerr polaire et b) dans le plan mesurés par VSM. c) Récapitulatif des grandeurs magnétiques mesurées pour chacune des trois épaisseurs.

*. Une couche tampon d'AuTa(8 %) permet d'obtenir un effet Hall de spin fort dans l'optique de réaliser des expériences de mouvement de parois.[112]

On note tout d'abord que la forme des courbes mesurées pour les faibles épaisseurs de cobalt est typique d'une texture magnétique en multidomaine. On observe d'autre part une augmentation du champ de saturation avec l'augmentation de l'épaisseur de Co, témoin d'une diminution de l'anisotropie perpendiculaire. On remarque également que le système composé de 6 Å de Co possède un champ coercitif de 12 ± 1 mT. Des cycles d'hystérésis fermés, comme ceux des multicouches avec les plus grandes épaisseurs de Co, sont préférables (mais non suffisants) pour la réalisation d'expériences de transfert de spins. Les cycles d'hystérésis dans le plan mesurés par magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) (figure 1.39b) associés aux mesures Kerr permettent d'extraire les valeurs d'anisotropie effective K_{eff} par soustraction d'aires pour les trois épaisseurs de Co. Ces valeurs sont reportées dans le tableau 1.39c, ainsi que les valeurs d'aimantation à saturation M_S accessibles au VSM, l'anisotropie uniaxiale $K_u = K_{eff} + K_d$, avec $K_d = \frac{1}{2}\mu_0 M_S^2$ l'énergie dipolaire, et le facteur de qualité $Q = K_u/K_d$. Ces valeurs ont été rapportées à l'épaisseur totale des multicouches $10 \times (10 + t_{Co} + 10)$. Un matériau à aimantation perpendiculaire est caractérisé par $K_{eff} > 0$ ou $Q > 1$. Ces valeurs semblent donc indiquer que l'épaisseur critique de Co pour obtenir une aimantation perpendiculaire dans les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_{10}$ se situe entre 6 et 8 Å.

Des études ont montré néanmoins la possibilité d'observer une structure magnétique en domaines à aimantation perpendiculaire dans des systèmes possédant un facteur de qualité $Q < 1$. En effet, Sukstanskii *et al.* ont démontré l'existence d'une texture magnétique en rubans dans des couches minces possédant une anisotropie effective négative, à condition d'être suffisamment épaisses [113]. Des mesures d'imagerie magnétique ont alors été menées sur les multicouches $\text{AuTa}(8\%)(55 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(t_{Co})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$. La figure 1.40 présente les textures magnétiques observées par MFM pour les trois épaisseurs de Co. Les images MFM ont été réalisées après les mesures d'aimantation et l'application d'un champ magnétique hors plan de 100 mT. On distingue un contraste magnétique pour les trois épaisseurs de Co. Cela prouve la présence d'un champ de fuite hors plan et donc d'une composante magnétique perpendiculaire non négligeable dans les trois cas. La multicouche composée de couches de Co de 6 Å présente une texture magnétique en domaines entrelacés étroits (130 ± 5 nm) et relativement courts. Le domaine sombre occupe une surface plus importante que les domaines clairs, en accord avec un champ coercitif et une rémanence non nuls mesurés précédemment par effet Kerr polaire. Le système composé de couches de 8 Å de Co possède une texture magnétique similaire à

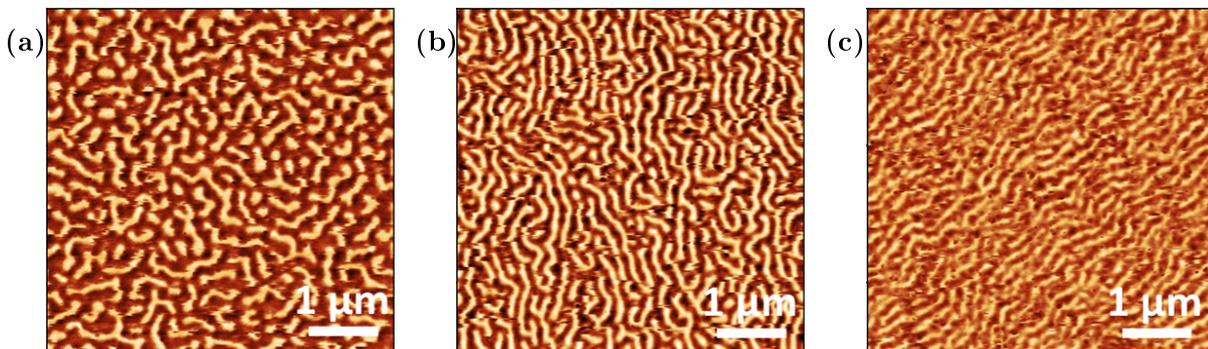


Fig. 1.40 – Images MFM de multicouches $\text{AuTa}(8\%)(55 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(t_{Co})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ avec $t_{Co} = a)$ 6 Å, $b)$ 8 Å, et $c)$ 10 Å.

la précédente. Les domaines magnétiques sont plus fins (93 ± 2 nm) et plus longs, sauf pour quelques bulles magnétiques nettement visibles. Enfin, pour 10 Å de Co, on remarque que les domaines magnétiques sont alignés les uns par rapport aux autres, et que le contraste est nettement moins intense (les trois images sont à la même échelle en intensité). La faible anisotropie perpendiculaire entraîne la formation de domaines de fermeture à la surface de l'échantillon, réduisant considérablement l'intensité du champ de fuite. Une telle texture magnétique en rubans faibles a été observée par exemple dans des couches minces de FePd à faible anisotropie ($Q \sim 0.4$) [114].

Ainsi, les mesures d'aimantation dans le plan et hors plan réalisées sur des multicouches $[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(t_{\text{Co}})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}$ ont révélé une anisotropie magnétique perpendiculaire faible, voire planaire pour des épaisseurs de Co $t_{\text{Co}} \geq 8 \text{ \AA}$. Les mesures d'imagerie magnétique ont montré la présence d'une texture magnétique en domaines fins entrelacés pour des épaisseurs de Co $t_{\text{Co}} \leq 8 \text{ \AA}$. Ainsi, les multicouches $[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(t_{\text{Co}})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}$, avec une épaisseur de Co t_{Co} située entre 6 et 8 Å, présentent des caractéristiques intéressantes pour la formation et la manipulation de skyrmions.

2) Quelle couche tampon ?

Afin d'optimiser ce système, une série d'échantillons avec différentes couches tampons a été développée. L'Au adhérant mal à l'oxyde de silicium, il est nécessaire d'ajouter une fine couche d'un autre métal pour rendre les mesures de magnéto-transport possibles. De la même façon que précédemment, notre choix de couche d'accroche sera basé sur des caractérisations magnétiques réalisées par effet Kerr et par MFM. Des multicouches $\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ ont été déposées par pulvérisation cathodique sur les mêmes substrats de SiOx, précédées d'une couche mince de Ti ou de Ta d'épaisseur variant entre 5 et 50 Å. Les mesures Kerr, présentées sur les figures 1.41a) et c), montrent une modification importante des cycles d'hystérésis en fonction de l'épaisseur de la couche d'accroche. En effet, on remarque une diminution flagrante du champ de saturation avec l'épaisseur de la couche tampon. Le champ de saturation passe de 200 mT à 100 mT et 130 mT pour une couche de 50 Å de Ti et de Ta respectivement. De plus, les images MFM (figures 1.41b) et d)) montrent un changement des motifs magnétiques lors de l'insertion d'une couche d'accroche de 50 Å de Ti et de Ta. En effet, on remarque que les domaines magnétiques sont plus longs et rectilignes que ceux observés dans la 5^{ème} figure du tableau 1.7. Cette variation de comportement magnétique pourrait être expliquée par la modification des interfaces entraînée par l'insertion de la couche d'accroche entre le substrat et les 5 nm d'Au. Cependant, les mesures de réflectivité aux rayons X (non présentées) ne révèlent pas de changement notable de rugosité aux interfaces. L'insertion d'une couche d'accroche épaisse ne semble donc pas favorable à la formation de skyrmions puisqu'elle entraîne la formation de longs domaines plutôt que de bulles magnétiques.

Néanmoins, il a été montré que l'application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan de la couche peut être nécessaire à la formation de skyrmions [78]. Des images MFM ont alors été réalisées sur les multicouches $\text{Ti}(50 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ et $\text{Ti}(5 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ afin d'observer le comportement de leurs domaines magnétiques sous champ. Dans le cas du premier système, avec une couche tampon épaisse, les domaines magnétiques

se contractent avec l'augmentation du champ magnétique appliqué hors plan, sans se raccourcir, jusqu'à complète disparition. La figure 1.42a présente un cliché MFM mesuré sur cet échantillon sous un champ magnétique de 52 mT, juste avant saturation. Un comportement similaire est observé pour les mêmes multicouches avec une épaisseur de Co de 8 Å. Dans le cas du second système, avec une couche tampon fine, les domaines magnétiques s'affinent et se raccourcissent lorsque l'on augmente l'amplitude du champ magnétique. La figure 1.42b présente une image MFM réalisée à 125 mT sur laquelle les domaines magnétiques apparaissent en forme de bulles.

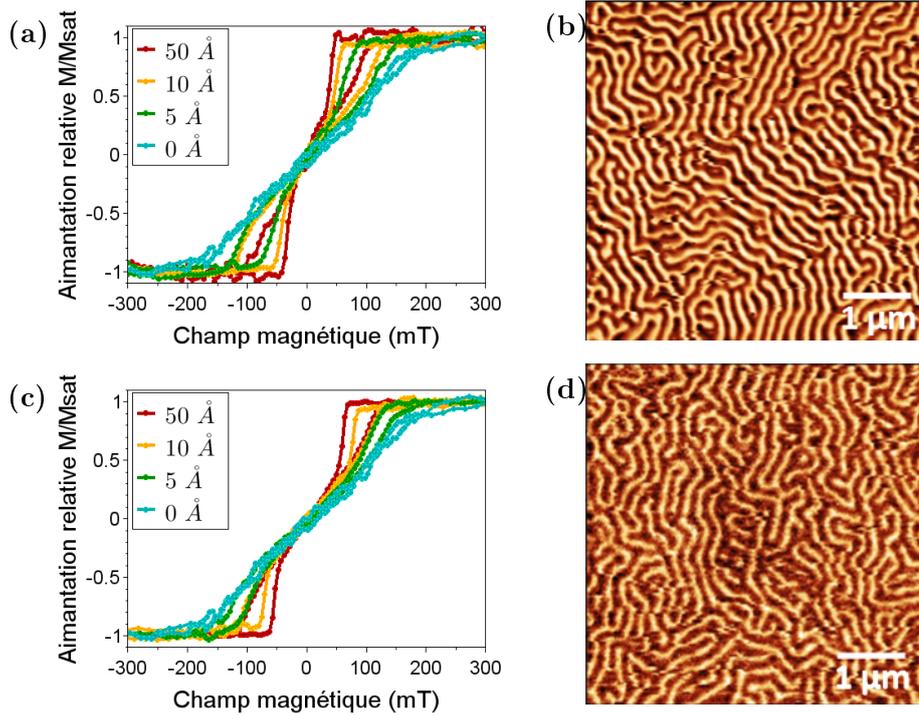


Fig. 1.41 – Cycles d'hystérésis hors plan mesurés par effet Kerr des multicouches $X(t_b)/Au(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(8 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$ avec $X = a)$ Ti ou $c)$ Ta et $t_b = 0, 5, 10, 50 \text{ \AA}$, et $b), d)$ images MFM correspondantes pour $t_b = 50 \text{ \AA}$.

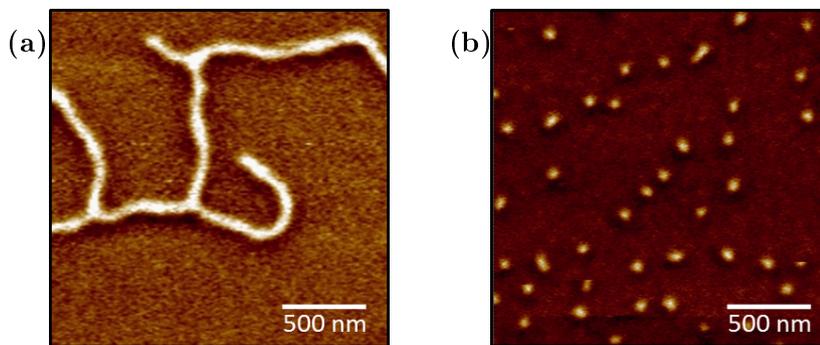


Fig. 1.42 – Images MFM sous champ magnétique hors plan de $a)$ Ti(50 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) à 52 mT et $b)$ Ti(5 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(8 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) à 125 mT.

Ainsi, les mesures par effet Kerr révèlent que l'insertion d'une couche d'accroche épaisse entraîne une augmentation de l'anisotropie magnétique perpendiculaire des multicouches. Les mesures d'imagerie magnétique montrent en parallèle que l'insertion d'une couche tampon trop épaisse empêche la formation de bulles magnétiques, même sous champ magnétique hors plan. En l'absence de DMI, la compétition entre l'interaction dipolaire et l'anisotropie hors plan est à l'origine de la stabilité des bulles magnétiques. L'interaction dipolaire tend à réduire la taille des domaines afin de minimiser l'énergie magnétostatique. Elle favorise donc la formation de bulles magnétiques. À l'opposé, l'anisotropie magnétique augmente l'énergie de paroi de domaine et favorise donc un état magnétique avec le moins de domaines magnétiques possible. Une augmentation de l'anisotropie magnétique perpendiculaire stabilise donc plutôt les longs domaines. Lorsque l'anisotropie magnétique est trop forte, les effets de champ démagnétisant associés à l'application d'un champ magnétique hors plan ne suffisent pas à stabiliser un état magnétique en bulles avant saturation du système. Les mesures de transport seront donc réalisées sur des multicouches déposées sur une couche d'accroche de 5 Å, ici de Ti.

D'autre part, il a été montré que le déplacement de parois magnétiques de Néel et de skyrmions est particulièrement efficace avec l'utilisation de l'effet Hall de spin (SHE) [84]. L'utilisation d'un matériau à fort SHE comme couche tampon serait alors très intéressant pour des expériences de manipulation de skyrmions et de parois de domaines. Nous avons donc vérifié la compatibilité d'une couche tampon d'AuTa à la place de l'Au pur avec nos multicouches. En effet, l'Au dopé à 8 % de Ta possède un angle de Hall de spin ($\theta_H = \frac{j_s}{j_c}$) de 48 %, contre 30 % pour le W, 15 % pour le Ta, 7 % pour le Pt et 0.4 % pour l'Au, et une résistivité relativement faible d'environ 78 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ [112]. Les mesures Kerr et les images MFM réalisées sur des multicouches déposées sur une couche tampon d'AuTa (figure 1.40) ne présentent aucune différence avec les mesures réalisées sur les multicouches déposées sur une couche tampon d'Au pur. Ce système ne sera pas étudié au cours de cette thèse, mais les mesures préliminaires valident l'utilisation de l'AuTa comme couche tampon des multicouches [Au/Co/Pd]_n pour des expériences de déplacement de parois et/ou de skyrmions de Néel.

3) Caractérisation structurale des multicouches [Au/Co/Pd]₁₀

La structure cristalline et l'état des interfaces ayant un impact considérable sur le comportement magnétique, la structure des multicouches [Au/Co/Pd]₁₀ a été analysée par des mesures de diffraction de rayons X, ainsi que par microscopie électronique en transmission. Les mesures de caractérisation structurale présentées ici ont été réalisées sur des échantillons sans couche d'accroche. La figure 1.43 présente la réflectivité du système SiOx/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(8 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å). Son ajustement nous renseigne sur les épaisseurs réellement déposées ainsi que sur la rugosité des interfaces. Le meilleur ajustement conduit à des valeurs d'épaisseurs de 10.5 Å d'Au, 7.3 Å de Co et 10.8 Å de Pd, et une rugosité d'interface de l'ordre de 5 Å.

La figure 1.45a présente une figure de diffraction aux grands angles restreinte à $2\theta \in [30^\circ; 60^\circ]$ mesurée sur le même échantillon. Afin de discriminer les pics relatifs aux tris-couches des contributions du substrat et des couches tampon et de protection, un spectre de diffraction a été mesuré sur une couche mince d'Au. 5 Å de Ti (ces mesures ont été réalisées après décision de la couche tampon) et 8 nm d'Au ont alors été déposés par

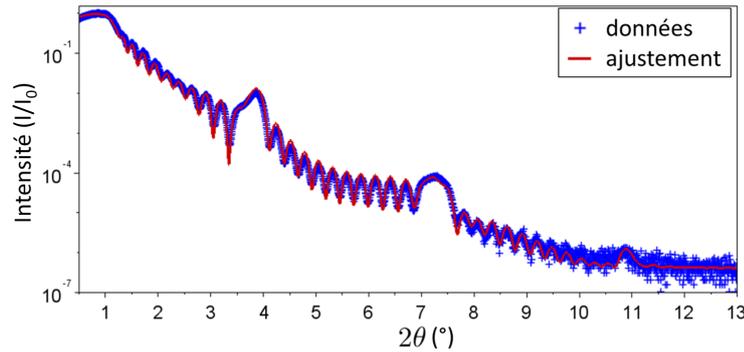


Fig. 1.43 – Courbe de réflectivité d'une multicouche $\text{SiOx}/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$, et son ajustement.

pulvérisation cathodique sur un substrat de SiOx avec les mêmes conditions de dépôt que les multicouches. La figure de diffraction de cette couche mince (figure 1.44a) exhibe deux contributions différentes. Le premier pic, à $2\theta = 39.72^\circ$, ajusté par la pseudo-Voigt rouge, est une raie parasite du substrat*. Le second pic, à $2\theta = 44.66^\circ$, correspond exactement à la raie (111) de l'Au. Les pics satellites autour de celui-ci sont des oscillations de Laue, témoins d'une bonne qualité cristalline. En effet, de la même façon que les franges de Kiessig déterminent l'épaisseur d'une couche, les oscillations de Laue caractérisent l'épaisseur des cristallites orientées selon la direction de la raie diffractée. Ici, un ajustement simple de la raie et de ses satellites par 5 pseudo-Voigts permet de déterminer une longueur de cohérence $D = \frac{\lambda}{2(\sin \theta_2 - \sin \theta_1)}$ de 7.8 nm, correspondant parfaitement à l'épaisseur d'Au déposée et mesurée par réflectivité (non présentée ici). L'Au déposé par pulvérisation cathodique sur substrat de SiOx possède donc une orientation de croissance préférentielle selon la direction $\langle 111 \rangle$. La figure 1.44b présente une figure de pôles réalisée à $2\theta = 44.65^\circ$, correspondant à la raie (111) de l'Au. La figure de pôles est composée d'une tâche centrale intense entourée d'un anneau situé à $\chi = 70.5^\circ$, correspondant à l'angle entre les raies (111) et $(1\bar{1}1)$ d'un cristal cubique. Cette mesure confirme donc la texture (111) de la couche tampon d'Au.

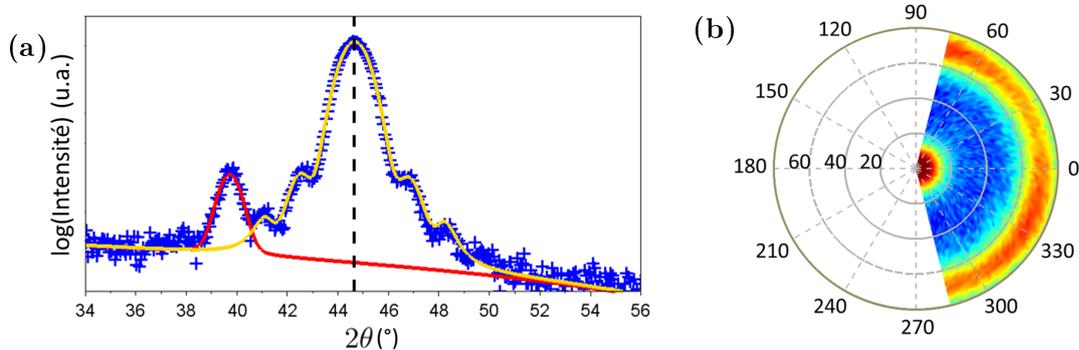


Fig. 1.44 – *a)* Spectre de diffraction d'une couche d'Au de 8 nm déposée par pulvérisation cathodique sur substrat de SiOx. Le trait en pointillés noir représente la position théorique de la raie (111) de l'Au. *b)* Figure de pôles réalisée sur $\text{SiOx}/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ à $2\theta = 44.65^\circ$ (Au (111)).

*. Ce pic parasite est la diffraction de rayons X d'énergie double ($\lambda/2$) par la raie Si(004)

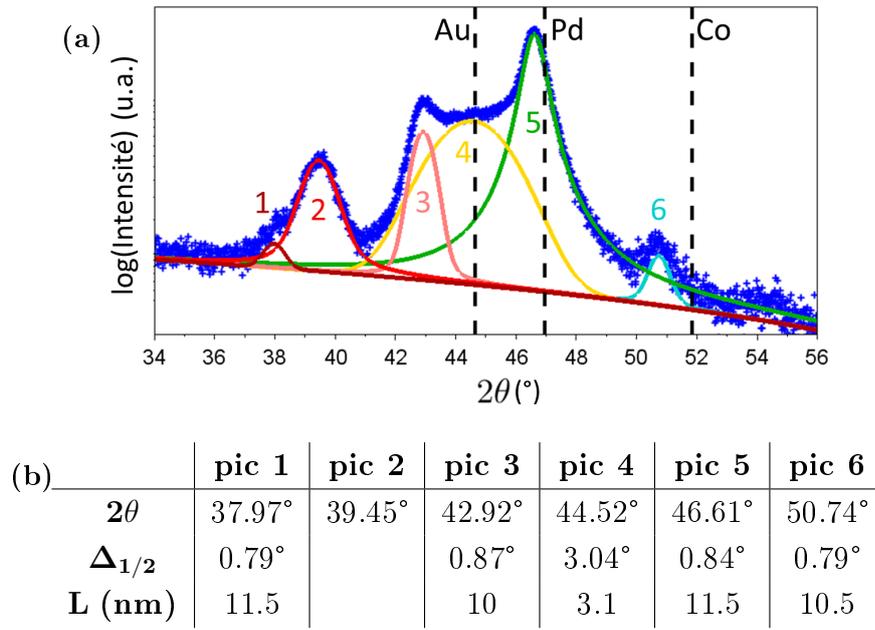


Fig. 1.45 – *a)* Balayage $\theta/2\theta$, ajusté avec 6 pseudo-Voigts, d'une multicouche $\text{SiOx}/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$. Les pointillés noirs représentent les positions théoriques des pics de diffraction des trois matériaux présents dans les trilocouche. *b)* Liste des positions 2θ et largeurs à mi-hauteur $\Delta_{1/2}$ des pseudo-Voigts, ainsi que la taille des cristallites L correspondantes.

Les raies du substrat et des couches d'Au ayant été identifiées, il est désormais possible d'extraire de la figure de diffraction 1.45a la contribution des multicouches uniquement. Cette figure de diffraction peut être approchée par la somme de 6 pseudo-Voigts, dont certains paramètres sont reportés dans le tableau 1.45b. L'ajustement a été réalisé en laissant les positions, intensités et largeurs de chaque pseudo-Voigt libres. Le pic 2 est le pic parasite du substrat identifié précédemment, et le pic 4 est attribué à la contribution de l'Au de la couche tampon de 5 nm et de la couche de protection de 3 nm. La mesure de la largeur à mi-hauteur $\Delta_{1/2}$ et l'application de la loi de Scherrer permet de quantifier une taille de cristallite L de l'ordre de 3 nm, cohérente avec les épaisseurs citées précédemment. Enfin, les 4 autres pics ne peuvent être simplement attribués à des raies des matériaux présents dans le système, le désaccord entre les pics mesurés et la position théorique des différents éléments (représentées en pointillés noirs sur la figure 1.45a) étant trop important. Dans le cas de couches très minces, il n'est pas possible d'identifier individuellement les différentes phases d'une multicouche. La figure de diffraction d'une telle multicouche présente un pic "moyen" et des pics satellites dans la mesure où les interfaces sont de bonne qualité [115]. Le pic central, positionné à $2\theta_0$, permet de quantifier une distance moyenne \bar{d} entre les plans atomiques des trilocouche parallèles au plan de l'échantillon selon la formule :

$$\bar{d} = \frac{n_1 d_1 + n_2 d_2 + n_3 d_3}{n_1 + n_2 + n_3} = \frac{p\lambda}{2 \sin \theta_0} \quad (1.4)$$

avec n_i le nombre de monocouche de l'élément i par période, d_i sa distance interréticulaire, λ la longueur d'onde des rayons X et p un nombre entier. D'autre part, la période des

tricouches Λ peut être calculée à partir de la position $2\theta_m$ des pics satellites selon la formule :

$$\Lambda = n_1d_1 + n_2d_2 + n_3d_3 = \frac{(m - n)\lambda}{2(\sin \theta_m - \sin \theta_n)} \quad (1.5)$$

D'après les épaisseurs mesurées par réflectivité (figure 1.43) et les distances interréticulaires des plans (111) des trois métaux présents dans les tricouches ($d_{Au} = 2.35 \text{ \AA}$, $d_{Co} = 2.05 \text{ \AA}$, $d_{Pd} = 2.25 \text{ \AA}$), une période $\Lambda = 28.6 \text{ \AA}$ et une distance moyenne $\bar{d} = 2.23 \text{ \AA}$ sont attendues. La position du pic central (pic 5) situé à $2\theta_0 = 46.61^\circ$ et les positions des pics satellites (pics 1, 3 et 6) permettent d'extraire une distance moyenne $\bar{d} = 2.26 \text{ \AA}$ et une période $\Lambda = 27 \text{ \AA}$, en accord avec les valeurs mesurées par réflectivité.

D'autre part, des mesures MET-HR en vue plane ont été conduites sur des multicouches Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) déposées sur des grilles MET (voir figure 1.46a). Des cristaux d'environ 5 nm de large sont directement visibles sur cette image. La transformée de Fourier (TF) de cette image MET-HR (figure 1.46b) présente une figure de diffraction circulaire unique, témoin d'une direction de croissance préférentielle mais polycristalline dans le plan. La TF de la zone encadrée en rouge présente quant à elle un motif hexagonal, correspondant à la figure de diffraction d'un plan (001) d'un cristal hexagonal ou d'un plan (111) d'un cristal cubique. Ici, le matériau observé est vraisemblablement l'Au, matériau le plus lourd et en plus grande quantité parmi les métaux composant nos multicouches, et de phase cristalline cubique. La direction de croissance préférentielle observée ici est donc la direction $\langle 111 \rangle$, en accord avec les mesures de diffraction de rayons X. Il est à noter que la calibration du MET utilisé pour ces images (FEI Titan 1 à 300 kV) est incorrecte. Les échelles indiquées sur la figure 1.46 ont donc été déterminées *a posteriori* par l'étude des images de Fourier. En effet, l'échan-

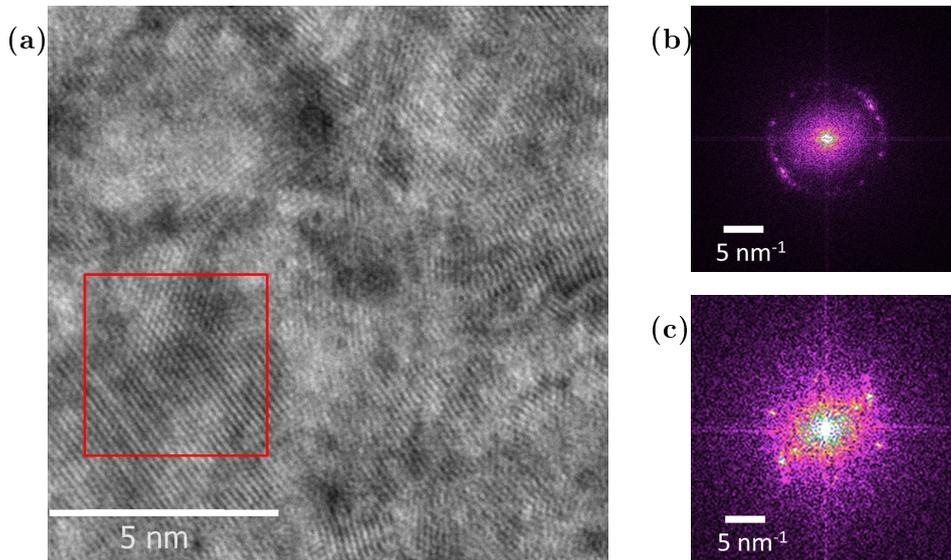


Fig. 1.46 – *a*) Image MET-HR en vue plane d'une multicouche Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å), et les TF *b*) de l'image complète et *c*) de la zone encadrée en rouge. Les échelles des images ont été calculées *a posteriori*.

tillon étant mesuré dans le plan (111), les tâches de diffraction observées correspondent aux directions $\langle 2\bar{2}0 \rangle$ de l'Au, dont la distance interréticulaire est 1.44 Å. On peut alors calculer le rayon du cercle de diffraction ($1/0.144 = 6.94 \text{ nm}^{-1}$), et en déduire les échelles des images dans les espaces réciproque et réel. L'erreur de calibration a été calculée et est de l'ordre de +64 %.

Ainsi, des mesures de diffractions de rayons X et d'imagerie MET-HR ont permis de caractériser précisément la structure des multicouches Ti(5 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6-8 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) déposées sur SiOx par pulvérisation cathodique. Elles possèdent donc une texture $\langle 111 \rangle$, qui correspond à la direction d'aimantation facile du Co. Cette texture entraîne alors un renforcement de l'anisotropie magnétique hors plan, et l'absence de direction préférentielle dans le plan. Les mesures de réflectivités ont permis de quantifier une rugosité d'interface de l'ordre de 5 Å, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que l'épaisseur des couches au sein des tricouches. Il est alors possible d'améliorer (ou de détériorer) l'état des interfaces en ajustant les paramètres de croissance tels que les vitesses de dépôt, offrant ainsi l'opportunité de modifier l'intensité de certaines interactions magnétiques. Cette piste n'a pas été suivie au cours de cette thèse, mais pourrait faire l'objet de recherches plus approfondies.

En conclusion, des mesures magnétiques préliminaires (Kerr et MFM) ont permis d'établir le potentiel des multicouches [Au/Co/Pd]_n et d'optimiser ce système pour des applications à la spintronique. Les multicouches SiOx/Ti(5 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(t_{Co})/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å), avec t_{Co} entre 6 et 8 Å, possèdent une anisotropie magnétique perpendiculaire visible par l'observation de motifs magnétiques en domaines entrelacés et en bulles à aimantation perpendiculaire plan de la couche. Il a de plus été montré que l'insertion d'une couche tampon d'AuTa ne modifiait pas les propriétés magnétiques, tout en permettant l'utilisation efficace de l'effet Hall de spin pour le déplacement de parois et/ou de skyrmions de Néel. Les études magnétiques réalisées sur ce système seront présentées dans la suite du manuscrit.

C. Développement et caractérisation des multicouches [Pt/Co/W]_n

Des multicouches [Pt/Co/W]₁₀ ont été développées d'autre part. En effet, les mesures préliminaires (figures 1.7) réalisées sur ces systèmes montrent une variation importante des propriétés magnétiques avec les épaisseurs et l'ordre des couches, présentant un intérêt potentiel de ces multicouches pour l'observation et la manipulation de skyrmions. Un double coin d'épaisseur d'une multicouche Ta(30 Å)/[Pt(t_{Pt})/Co(t_{Co})/W(t_W)]₁₀/Al(20 Å) a alors été réalisé par pulvérisation cathodique sur un wafer de SiOx de 4 pouces*, sous une pression d'Ar de 2×10^{-3} mbar et avec des taux de dépôt de 0.3 Å/s pour le Co et 0.7 Å/s pour le Pt et W. Le coin d'épaisseur est réalisé par l'insertion d'un déport radial entre la cible et le substrat. L'épaisseur de Co t_{Co} varie entre 6 et 13 Å dans une direction et les épaisseurs de Pt et de W $t_{Pt} = t_W$ varient de 6 à 13 Å dans la direction perpendiculaire. Un échantillon témoin avec des couches de Pt et de W d'épaisseurs constantes

*. Échantillon réalisé par Stéphane Auffret au CEA de Grenoble

($t_{Pt} = t_W = 10 \text{ \AA}$) et un unique gradient d'épaisseur de Co a également été fabriqué. Cet échantillon permet alors une caractérisation structurale plus précise car non moyennée sur des gradients d'épaisseurs de Pt et de W.

Comme précédemment, des mesures de réflectivité et de diffraction de rayons X ont été conduites sur ces échantillons. Ces mesures ont été réalisées pour trois épaisseurs de Co différentes (zones 1, 2, 3 représentées figure 1.47a). Les ajustements des réflectivités présentées figure 1.47b permettent d'établir les valeurs des épaisseurs de chaque couche

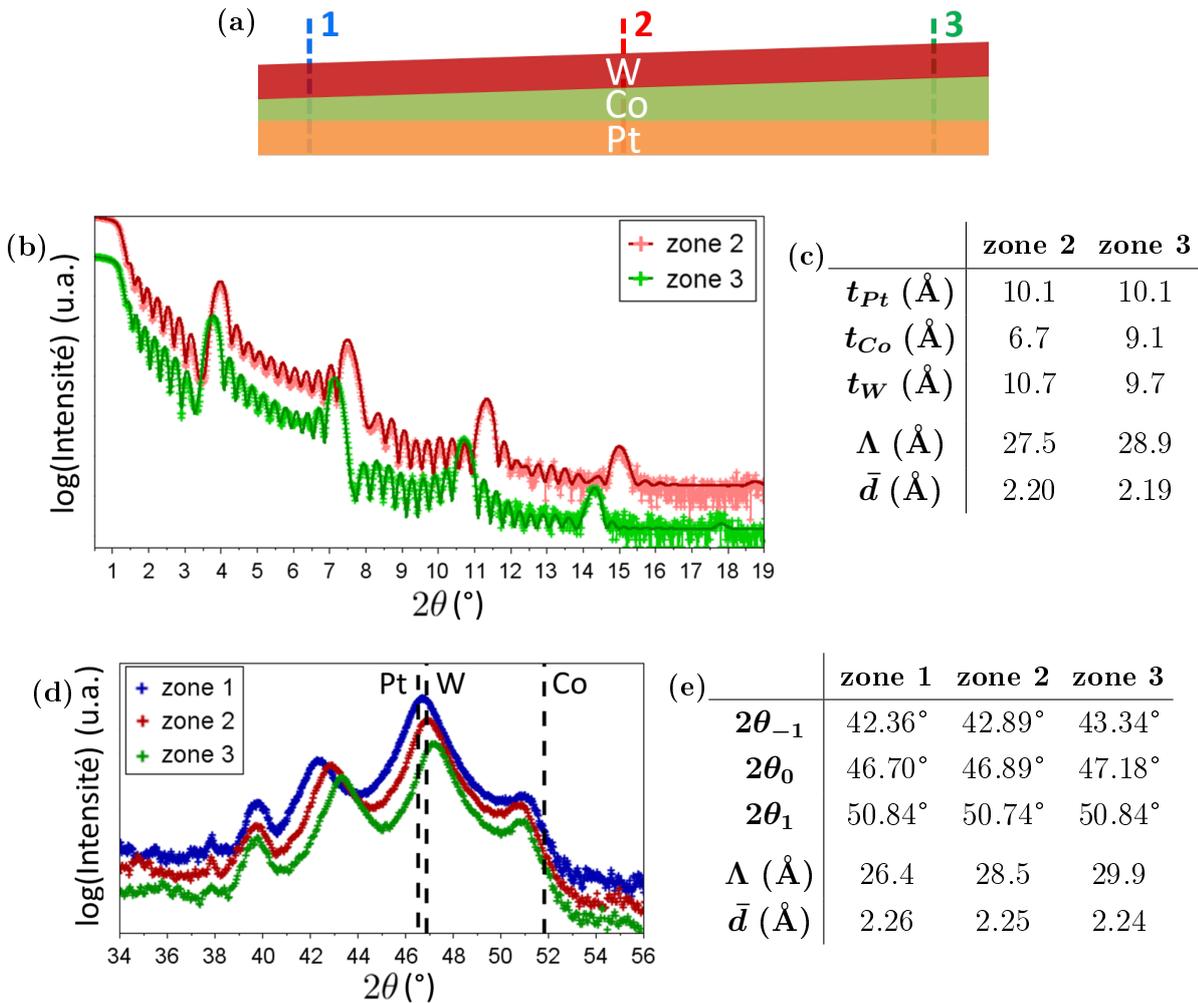


Fig. 1.47 – *a)* Schéma d'une tricouche avec coin d'épaisseur de Co et des trois zones de mesure. *b)* Mesures de réflectivité ('+' clairs) et ajustements (traits pleins foncés) du système $SiO_x/Ta(30 \text{ \AA})/[Pt(10 \text{ \AA})/Co(t_{Co})/W(10 \text{ \AA})]_{10}/Al(20 \text{ \AA})$ et *c)* résultats des ajustements. t_{Pt} , t_{Co} et t_W sont les épaisseurs mesurées, Λ et \bar{d} sont la période des tricouches et la distance interréticulaire moyenne calculées à partir de ces valeurs. *d)* Diffraction aux grands angles et *e)* liste des positions des pics relatifs aux tricouches pour trois épaisseurs de Co différentes, ainsi que les périodes Λ et distances interréticulaires moyennes \bar{d} correspondantes. En pointillés noirs sont représentées les positions théoriques des raies du Pt (111), du W (110) et du Co (111).

(répertoriées dans le tableau 1.47c) et d'apprécier la qualité des interfaces. Les épaisseurs mesurées de Pt et de W, ainsi que des couches tampon et de protection, correspondent aux valeurs nominales. À l'opposé, les épaisseurs mesurées de Co sont plus faibles, la valeur maximale (mesurée en zone 3) étant de 9.1 Å. La période et la distance interatomique moyenne extraites de ces mesures sont également reportées dans le tableau 1.47c (considérant $d_{Pt} = 2.27$ Å, $d_{Co} = 2.05$ Å et $d_W = 2.25$ Å). D'autre part, les rugosités sont quantifiées à 2.5 Å aux interfaces Pt/Co et W/Pt, et 5-6 Å (dépendant des épaisseurs de Co) aux interfaces Co/W. Une telle rugosité peut être le témoin de la formation d'un alliage CoW, non magnétique. La technique de dépôt utilisée pour les coins d'épaisseur est responsable de cette rugosité importante. En effet, des mesures réalisées d'autre part sur des dépôts hors-axe par pulvérisation cathodique ont révélé une augmentation considérable de la rugosité (voir figure 1.48). Il est donc important de noter que cette rugosité peut être nettement améliorée en réalisant un dépôt dans l'axe une fois les épaisseurs optimales déterminées.

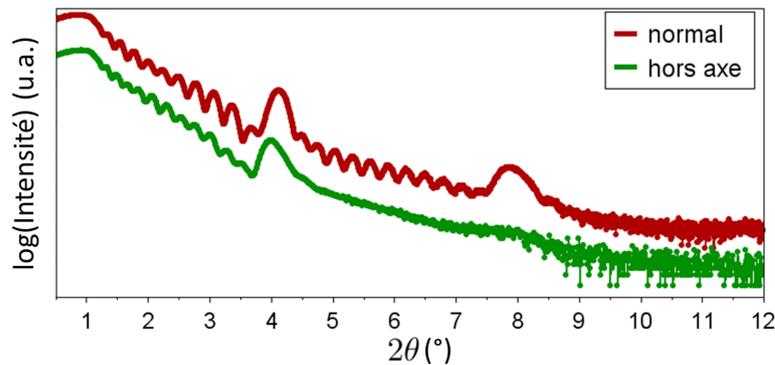


Fig. 1.48 – Réflectivité de multicouches $AuTa(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(6 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$ déposées hors axe et dans l'axe. L'atténuation forte des franges de Kiessig des couches déposées hors axe est le témoin d'une augmentation considérable des rugosités d'interface.

Des mesures de diffraction de rayons X ont également été menées sur ces systèmes $[Pt/Co/W]_n$. La figure 1.47d présente les balayages $\theta/2\theta$ réalisés pour trois épaisseurs de Co différentes. Ces figures de diffraction sont composées de 3 pics (le pic à 39.7° étant un pic parasite du substrat). Les positions théoriques des raies de diffraction du Pt (111), du Co (111) et du W (110) sont représentées par des pointillés noirs. De la même façon que décrit précédemment, ces trois pics correspondent à une raie de diffraction centrale de position $2\theta_0$ et à ses deux satellites en $2\theta_{-1}$ et $2\theta_1$. Les positions de ces pics sont reportées dans le tableau 1.47e, ainsi que les périodes Λ et distances interréticulaires moyennes \bar{d} calculées pour chacune des zones de mesure suivant les équations 1.5 et 1.4. Ces valeurs sont cohérentes à plus de 95 % avec celles extraites des mesures de réflectivité. De plus, la mesure des largeurs à mi-hauteur et l'application de la loi de Scherrer permet d'extraire une distance de cohérence cristalline de l'ordre de 7 nm. L'absence de texture cristalline de la couche tampon (le tantale déposé sur SiOx est *a priori* amorphe) peut expliquer la cohérence plus faible de ce système par rapport aux 10 nm mesurés précédemment dans le cas des multicouches $[Au/Co/Pd]_n$.

Ainsi, les multicouches $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{W}]_{10}$ ont été caractérisées par réflectivité et diffraction de rayons X. Ces multicouches possèdent une rugosité d'interface relativement faible (2.5 Å pour les épaisseurs constantes et 5-6 Å pour les coins d'épaisseurs), pouvant être améliorée par simple réduction du dépôt latéral du substrat par rapport à la cible. Les mesures de diffraction montrent une direction de croissance préférentielle des tricouches dans la direction $\langle 111 \rangle$ du Pt et du Co, et $\langle 110 \rangle$ du W, malgré l'absence de texture de la couche tampon, renforçant ainsi l'anisotropie magnétique perpendiculaire. Par la suite, ces multicouches seront caractérisées magnétiquement en fonction des épaisseurs de Co, de Pt et de W, permettant d'extraire les paramètres magnétiques nécessaires à la compréhension de ce système.

Les propriétés magnétiques étant étroitement liées aux propriétés structurales des échantillons, les connaissances acquises sur la structure de nos systèmes nous permettent d'extraire des paramètres magnétiques précis, et de mieux comprendre et appréhender les phénomènes magnétiques qui seront observés par la suite. Il sera alors envisageable de manipuler et d'adapter les différentes interactions magnétiques en jeu par simple modification de certains paramètres de croissance par exemple.

Chapitre 2

Propriétés magnétiques et renversement d'aimantation

Sommaire

| | | |
|-----------|---|-----------|
| I | Techniques de caractérisation magnétique | 69 |
| A. | Magnétométrie | 69 |
| | 1) Magnétomètre à SQUID | 70 |
| | 2) Magnétomètre à échantillon vibrant | 71 |
| | 3) Magnétomètre à effet Kerr magnéto-optique polaire | 71 |
| B. | Imagerie magnétique | 72 |
| | 1) Microscopie à force magnétique | 72 |
| | 2) Microscopie électronique en transmission en mode Lorentz | 74 |
| C. | Autres techniques | 77 |
| II | Mesures de magnéto-transport | 79 |
| A. | Magnétorésistances longitudinales | 79 |
| | 1) Magnétorésistance anisotrope | 79 |
| | 2) Résistance de paroi | 80 |
| | 3) Magnétorésistance de magnons | 80 |
| B. | Mesures de Hall | 81 |
| | 1) Effets Hall ordinaire et extraordinaire | 81 |
| | 2) Effet Hall topologique | 82 |

| | | |
|------------|---|------------|
| III | Caractérisations magnétiques des couches minces de FeGe . . . | 85 |
| | A. Effet Hall topologique dans les couches minces de FeGe | 85 |
| | 1) Extraction des paramètres magnétiques | 85 |
| | 2) Magnéto-transport | 86 |
| | 3) Extraction de l'effet Hall topologique | 88 |
| | B. Direction de propagation des hélices magnétiques déterminée par spectroscopie Mössbauer | 90 |
| | 1) Introduction à la spectroscopie Mössbauer | 90 |
| | 2) Étude de couches minces de FeGe par spectroscopie Mössbauer | 91 |
| | C. Spectroscopie par rotation de spin du muon | 94 |
| | 1) Introduction à la spectroscopie de muons | 94 |
| | 2) μ SR sur couches minces de FeGe | 98 |
| | D. Conclusion et perspectives pour les couches minces de FeGe . . . | 101 |
| IV | Étude des propriétés magnétiques des multicouches [Au/Co/Pd]_n | 103 |
| | A. Effets de taille sur la texture magnétique des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 103 |
| | 1) Détermination des paramètres magnétiques | 103 |
| | 2) Propriétés électriques des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 104 |
| | 3) Effets de taille sur la texture magnétique et le renversement d'aimantation | 106 |
| | B. Imagerie magnétique et spectroscopie des multicouches [Au/Co/Pd] _n | 110 |
| | 1) Microscopie à force magnétique sous champ | 110 |
| | 2) Microscopie électronique en transmission en mode Lorentz | 112 |
| | 3) Spectroscopie Brillouin | 115 |
| | C. Conclusion et perspectives pour les multicouches [Au/Co/Pd] _n . . . | 117 |
| V | Dépendance en épaisseurs des propriétés magnétiques des multicouches [Pt/Co/W]₁₀ | 119 |
| | A. Cartographies magnétiques | 119 |
| | B. Extraction des paramètres magnétiques | 125 |
| | C. Conclusion et perspectives pour les multicouches [Pt/Co/W] _n . . . | 127 |

I Techniques de caractérisation magnétique

La caractérisation magnétique d'un système est complexe. Il est nécessaire de combiner différentes techniques afin de caractériser complètement un système magnétique. La magnétométrie en général donne accès à des paramètres macroscopiques statiques tels que l'aimantation à saturation, la coercivité ou la rémanence d'un système. Ces paramètres sont primordiaux pour la compréhension d'un système et la quantification des interactions magnétiques en jeu. L'imagerie magnétique permet de visualiser l'organisation microscopique de l'aimantation au sein de l'échantillon. Elle autorise la détermination de la forme et de la taille des domaines magnétiques, ainsi que la nature des parois de domaines. Certaines techniques d'imagerie magnétique permettent également d'observer le comportement dynamique des domaines ou parois magnétiques sous l'application d'un champ magnétique et/ou d'un courant de charges ou de spins. Les directions de déplacement et vitesses de parois apportent de nouvelles informations telles que le signe et la valeur de la constante d'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) et de l'angle de Hall de spins par exemple. D'autres techniques permettent d'accéder à des propriétés magnétiques microscopiques, telles que la distribution de l'orientation des moments magnétiques ou leur dynamique. La diffraction de neutrons, évoquée plus tôt dans le manuscrit, a permis par exemple de découvrir une nouvelle texture magnétique et d'établir le diagramme de phase magnétique du MnSi [18]. Les mesures de magnéto-transport, largement utilisées pour la caractérisation de matériaux magnétiques, seront décrites dans la partie suivante.

A. Magnétométrie

La magnétométrie donne accès aux paramètres magnétiques macroscopiques d'un système, à la base d'une caractérisation magnétique complète.

Les mesures de magnétométrie peuvent également être un moyen de discriminer une phase cristalline d'une autre, ou de caractériser la qualité de la cristallisation d'une couche mince. Dans le cas de l'alliage FeGe 50-50 par exemple, la phase monoclinique (croissance à 350 °C) et la phase cubique B20 n'ont pas les mêmes propriétés magnétiques. La figure 2.1a présente la dépendance en température de l'aimantation de quatre échantillons de FeGe élaborés avec des conditions de croissance différentes. Ces mesures montrent une température de transition autour de 275 K pour les croissances à 375 °C et plus, tandis qu'elle est de 250 K dans le cas de la croissance à 350 °C. Cela confirme alors la formation du FeGe B20 au-delà d'une température de dépôt de 375 °C, observée précédemment par diffraction de rayons X. De plus, une aimantation de l'ordre de $1\mu_B/\text{Fe}$, c'est-à-dire $\simeq 360 \text{ kA/m}$, est attendue. La figure 2.1b montre l'évolution de l'aimantation à saturation en fonction des conditions de dépôt. La couche mince déposée à 375 °C et avec un flux d'Ar de 32 sccm présente une aimantation à saturation de l'ordre de 270 kA/m, nettement plus élevée que celle des autres échantillons. Ceci témoigne d'une meilleure, mais non parfaite, qualité cristalline.

Il existe différentes techniques de magnétométrie, chacune avec ses spécificités. Au cours de cette thèse, le magnétomètre à SQUID, le magnétomètre à échantillon vibrant et le magnétomètre magnéto-optique par effet Kerr ont été largement utilisés pour déterminer les paramètres macroscopiques des échantillons étudiés. Le principe de fonctionnement de ces trois techniques est exposé succinctement.

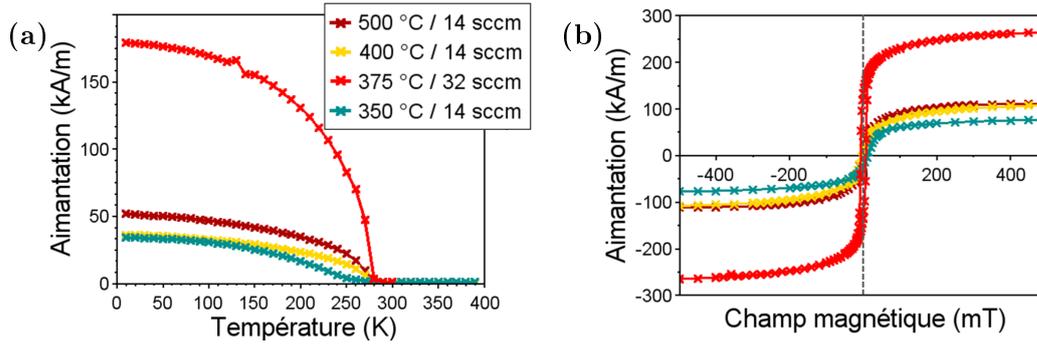


Fig. 2.1 – *Comparaison des propriétés magnétiques de différentes couches minces de FeGe. a) Aimantation en fonction de la température à 10 mT et b) cycles d’hystérésis à 100 K, mesurés par magnétométrie à SQUID.*

1) Magnétomètre à SQUID

Le magnétomètre à SQUID (pour *Superconducting Quantum Interference Device*) permet de mesurer le moment magnétique dans le plan ou hors plan d’un échantillon avec une précision de l’ordre de 10^{-11} A.m². L’équipement utilisé au cours de cette thèse dispose d’une bobine supraconductrice permettant d’accéder à des champs magnétiques de 5 T. Il permet également de réaliser des mesures à des températures variant de 2 à 400 K.

Le magnétomètre à SQUID fonctionne sur le principe de la loi de Faraday. L’échantillon est situé au milieu de boucles supraconductrices. Le déplacement de l’échantillon crée une variation de flux magnétique à travers les spires, induisant un courant électrique parcourant les spires :

$$\oint_C \mathbf{E} \cdot d\mathbf{l} = - \iint_S \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \cdot \mathbf{n} dS$$

Les boucles de détection sont enroulées de façon à être insensible au champ magnétique produit par l’électroaimant et à ne mesurer que la contribution du moment magnétique de l’échantillon. Le courant ainsi créé est alors transporté sans perte à travers un circuit électrique supraconducteur jusqu’à une bobine, induisant un champ magnétique mesuré par le SQUID avec une grande précision et converti en tension. Les données de mesure consistent en la variation de cette tension en fonction de la position de l’échantillon par rapport aux boucles de détection. L’ajustement de ces données permet alors d’extraire le moment magnétique de l’échantillon, considéré comme un dipôle magnétique. Il convient

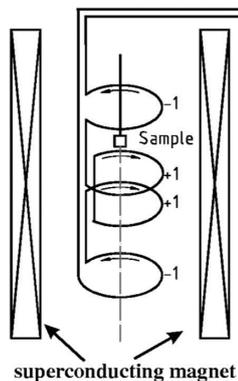


Fig. 2.2 – *Schéma de principe de détection d’un magnétomètre à SQUID. L’échantillon traverse en leur centre les boucles de détection, elles-mêmes situées au centre de l’électroaimant.*

de noter que par cette technique tout l'échantillon est sondé, incluant les contributions magnétiques du substrat. Dans les mesures SQUID présentées par la suite, la contribution diamagnétique des substrats de Si sera retirée par simple soustraction de la pente de l'aimantation après saturation.

Le magnétomètre à SQUID offre ainsi une vaste plage de mesures en champ et en température, associée à une très grande précision. Néanmoins, cela implique un certain nombre de contraintes telles que l'utilisation couteuse d'hélium liquide, le sacrifice de l'échantillon dont la longueur ne doit pas dépasser 5 mm et qui est mis en place à l'aide de colle, et un temps de mesure très long (de l'ordre de la demi-journée pour obtenir un demi-cycle d'hystérésis).

2) Magnétomètre à échantillon vibrant

Le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) permet de mesurer le moment magnétique d'un échantillon en fonction du champ magnétique appliqué avec une précision de l'ordre de 10^{-9} A.m². L'instrument utilisé au cours de cette thèse permet de réaliser des mesures à température ambiante avec un champ magnétique maximal de 1.5 T. Le montage offre la possibilité d'appliquer le champ magnétique dans toutes les directions de l'échantillon.

Le VSM fonctionne sur le même principe que le magnétomètre à SQUID. L'échantillon, placé au centre d'un électroaimant, vibre le long de l'axe perpendiculaire à l'axe de l'électroaimant à une fréquence proche de 40 Hz. Les bobines de détection, placées sur les pièces polaires de l'électroaimant, détectent la variation sinusoïdale du flux magnétique et la convertissent en tension électrique. L'enroulement et le placement des bobines de détection permettent la mesure du champ magnétique induit par l'échantillon en s'affranchissant du champ magnétique constant créé par l'électroaimant. Une mesure synchrone basée sur la fréquence d'oscillation de l'échantillon permet de réduire encore le bruit de mesure. Avec cette technique, le signal mesuré est celui de tout l'échantillon, substrat compris.

La plage de mesure offerte par le VSM utilisé ici est beaucoup plus restreinte que celle du magnétomètre au SQUID. Cependant, les contraintes expérimentales sont réduites, et les mesures plus rapides (un demi-cycle d'hystérésis peut-être mesuré en 30 min).

3) Magnétomètre à effet Kerr magnéto-optique polaire

Le magnétomètre à effet Kerr magnéto-optique (MOKE) polaire, contrairement aux magnétomètres cités précédemment, ne permet pas d'accéder à la valeur de l'aimantation de l'échantillon. Le signal mesuré est proportionnel au moment magnétique à la surface de l'échantillon. L'équipement MOKE utilisé ici permet de réaliser des mesures à température ambiante avec un champ magnétique appliqué perpendiculairement à la surface de l'échantillon et allant jusqu'à 1.5 T.

L'effet Kerr magnéto-optique est basé sur l'interaction de l'onde électromagnétique de la lumière avec l'aimantation à la surface de l'échantillon mesuré. L'effet Kerr en particulier est un effet biréfringent en réflexion. C'est-à-dire que le milieu magnétique n'agit pas de la même façon sur les composantes circulaires droite et gauche d'une lumière in-

cidente. On envoie alors une onde polarisée linéairement en incidence perpendiculaire au plan l'échantillon, et on mesure l'ellipticité et la rotation de la polarisation du faisceau réfléchi après interaction avec l'échantillon. L'utilisation d'un prisme de Wollaston permet de séparer l'onde réfléchie en deux ondes de polarisations rectilignes orthogonales l'une à l'autre. La différence d'intensité de ces deux faisceaux permet d'accéder à la rotation de polarisation du faisceau incident après interaction avec le milieu magnétique. Un avantage de cette technique est que seule la surface de l'échantillon, et donc la couche mince magnétique, est sondée.

Cette technique non destructive permet alors d'obtenir rapidement et facilement des informations magnétiques à travers la mesure d'un cycle d'hystérésis hors plan. Associée à l'une des deux autres techniques de magnétométrie, il est possible de caractériser précisément un système magnétique par l'obtention des valeurs d'aimantation à saturation, de l'anisotropie magnétique, de la rémanence et de la coercivité dans toutes les directions de l'échantillon. D'autre part, les mesures MOKE étant locales, elles permettent d'explorer l'évolution des caractéristiques magnétiques d'un coin d'épaisseur.

B. Imagerie magnétique

La caractérisation des motifs magnétiques est une étape importante du développement de systèmes pour la spintronique. En effet, la taille des domaines et la nature des parois sont des paramètres capitaux pour des applications à la spintronique. Une taille de domaines petite permet d'augmenter la capacité des appareils de stockage. Et nous avons vu précédemment que les parois de Néel peuvent être mues efficacement par effet Hall de spins, permettant un transport d'information rapide et à basse consommation d'énergie. D'autre part, puisque la taille des domaines magnétiques et la nature des parois résultent de la compétition entre les différentes interactions magnétiques, la caractérisation de la texture magnétique permet de quantifier certaines de ces interactions.

Deux techniques complémentaires d'imagerie magnétique ont été utilisées au cours de cette thèse. La première, la microscopie à force magnétique, permet de visualiser le champ de fuite perpendiculaire au plan de l'échantillon. La seconde, la microscopie électronique en transmission en mode Lorentz, est plus adaptée à l'observation des moments magnétiques dans le plan de l'échantillon.

1) Microscopie à force magnétique

La microscopie à force magnétique (MFM) est sensible au gradient du champ de fuite au-dessus de l'échantillon et perpendiculaire au plan de l'échantillon. La MFM est alors très bien adaptée pour imager les motifs magnétiques des systèmes à aimantation perpendiculaire tels que les nôtres. La MFM a une résolution latérale de l'ordre de 20 nm, nettement plus petite que le μm de la microscopie MOKE. Le principe de fonctionnement du MFM est basé sur l'interaction entre le moment magnétique $\mathbf{M}_{\text{pointe}}$ d'une pointe (souvent modélisé par un dipôle magnétique) et le champ de fuite proche de la surface de l'échantillon \mathbf{H}_{ech} : $F_j = \mu_0 \mathbf{M}_{\text{pointe}} \cdot \partial_i \mathbf{H}_{\text{ech}}$. Le mode dynamique est utilisé dans la plupart des mesures MFM. La pointe est mise en oscillation forcée à une fréquence proche de sa fréquence de résonance (~ 75 kHz), et parcourt la zone de mesure à une altitude

définie. Dans ce mode, on mesure la variation de la phase des oscillations qui traduit un changement dans le champ de fuite au-dessus de l'échantillon. Il est possible d'adapter la sensibilité magnétique en modifiant l'amplitude des oscillations de la sonde, et la résolution latérale avec l'altitude de parcourt de la pointe (1 à 100 nm). L'existence d'un compromis entre sensibilité magnétique et résolution latérale est alors évidente. En pratique, la technique "en deux passages" est utilisée. C'est-à-dire que la zone de mesure est parcourue une première fois pour acquérir la topographie, puis la pointe effectue un deuxième passage à l'altitude imposée au-dessus de la topographie mesurée précédemment. Cela permet de s'affranchir de la contribution des forces de Van der Waals et de ne mesurer que les forces à longue portée telles que les forces magnétiques et électrostatiques. Ces dernières peuvent entraîner l'apparition d'artefacts dans le contraste de l'image MFM et empêchent la quantification facile du champ magnétique mesuré.

Une limitation importante de la MFM est l'interaction de la pointe sur les domaines magnétiques de l'échantillon mesuré. En effet, si le champ coercitif du système mesuré est comparable au champ rayonné par la pointe ($\sim 10^{-16}$ A.m² pour les pointes standards), il est possible que le simple passage de celle-ci déplace des parois de domaines, ou crée/annihile des domaines magnétiques. Ce phénomène est montré sur la figure 2.3. L'échantillon mesuré ici est une multicouche [Pt/Co/W]₁₀. Sur l'image a), où la pointe se déplace horizontalement et balaye l'échantillon de haut en bas, on peut visualiser le passage d'un état magnétique saturé à un état en multidomaine. Les domaines magnétiques se forment sous l'effet du champ rayonné par la pointe MFM. L'image b) montre la même zone de l'échantillon, mais ici la pointe se déplace verticalement et balaye l'échantillon de droite à gauche. Cette image confirme la création des domaines magnétiques par le simple passage de la pointe magnétique. Afin de s'affranchir de ce problème, il est possible de modifier le moment magnétique de la sonde en adaptant l'épaisseur de la couche magnétique déposée sur la pointe (~ 40 nm pour les pointes MFM standards). Certaines images MFM présentées dans la suite du manuscrit ont été réalisées avec des pointes MFM fabriquées par Simon Le Denmat à l'Institut Néel par dépôt de 20 nm de CoCr sur des pointes AFM ultra fines, permettant alors une observation non perturbée des domaines magnétiques ainsi qu'une meilleure résolution latérale.

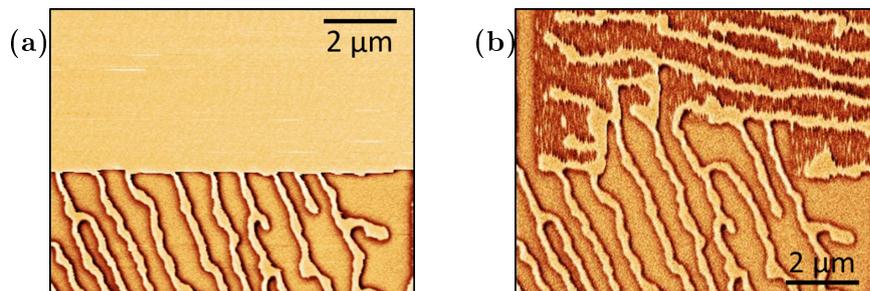


Fig. 2.3 – Images MFM d'une multicouche [Pt/Co/W]₁₀. La pointe MFM parcourt la surface de l'échantillon a) dans la direction horizontale et b) dans la direction verticale.

La MFM est une technique particulièrement intéressante pour l'imagerie magnétique de systèmes à aimantation perpendiculaire, et a donc été largement utilisée au cours de cette thèse pour la caractérisation des systèmes en multicouches. L'observation des tex-

tures magnétiques au sein d'un cristal de FeGe est également possible [116], mais nécessite la possibilité de contrôler la température de l'échantillon. Les deux microscopes utilisés au cours de cette thèse fonctionnent uniquement à température ambiante, et l'utilisation de modules Peltier s'est révélée inefficace pour l'observation des couches minces de FeGe. L'imagerie par MFM permettra de déterminer la taille des domaines magnétiques avec une précision de ± 20 nm au sein des multicouches. Cependant, cette technique sensible uniquement au champ de fuite hors plan ne permet pas de caractériser la nature des parois magnétiques.

2) Microscopie électronique en transmission en mode Lorentz

La microscopie électronique en transmission (MET) en mode Lorentz (MET-L) est sensible à l'induction magnétique orthogonale au faisceau d'électron. Elle permet alors de détecter le champ magnétique induit dans le plan de la couche, avec une résolution latérale de l'ordre du nanomètre. La MET-L offre alors la possibilité d'observer la rotation des moments magnétiques au niveau des parois de domaines, et ainsi de déterminer la nature des parois magnétiques. L'utilisation d'un microscope électronique en mode Lorentz nécessite la présence d'une lentille supplémentaire dite de Lorentz (placée sous l'échantillon pour limiter le champ perçu par celui-ci) et la possibilité d'éteindre la lentille objective (située au niveau de l'échantillon). En effet, le fort champ magnétique (2-3 T) créé par la lentille objective saturerait complètement l'échantillon et rendrait impossible toute observation magnétique. La lentille objective peut alors être utilisée comme un simple électroaimant afin de réaliser des mesures sous champ (parallèle au faisceau d'électron). D'autre part, les porte-échantillons offrent parfois la possibilité d'incliner l'échantillon. Cela permet alors d'accéder à des composantes du champ magnétique induit hors du plan de l'échantillon, ainsi que d'appliquer un champ magnétique dans le plan de la couche.

Le principe de la MET-L est basée sur la déviation du faisceau d'électrons par le champ magnétique induit *via* la force de Lorentz : $\mathbf{F} = q \cdot (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$, avec \mathbf{E} le champ électrique, \mathbf{B} le champ magnétique, q la charge de l'électron, et \mathbf{v} sa vitesse. Une simple approche géométrique considère le résultat de la force de Lorentz comme une déflexion du faisceau d'électrons d'un angle $\beta = \frac{e\lambda}{h} \int B_{\perp} dz$ [117] avec h la constante de Planck, e la charge élémentaire, λ la longueur d'onde des électrons (~ 2 pm à 300 kV), et B_{\perp} l'induction magnétique perpendiculaire rencontrée tout au long du trajet des électrons. Cet angle de déflexion est inférieur à 100 μrad ($\frac{e\lambda}{h} = 0.48 \mu\text{rad} \cdot \text{T}^{-1} \cdot \text{nm}^{-1}$), très faible devant les angles de Bragg de l'ordre du mrad pour des cristaux standards.

Il existe plusieurs techniques d'observation des contrastes magnétiques en MET-L. Nous nous intéresserons ici à la méthode de Fresnel et à la méthode de contraste de phase différentielle (appelée DPC) en mode MET à balayage (METB). Ces deux méthodes peuvent être expliquées simplement par une approche géométrique. La méthode de Fresnel consiste en l'observation des plans défocalisés situés au-dessus ou en dessous du plan image. Le contraste formé par deux domaines magnétiques accolés se forme ainsi (voir figure 2.4a) : deux parties du faisceau d'électrons déviées par des champs magnétiques induits opposés, et donc dans des directions différentes, seront juxtaposées dans le plan image, tandis qu'elles se recouvreront (ou s'écarteront) dans les plans défocalisés, donnant alors naissance à des contrastes blancs (ou noirs). Les contrastes observés par la méthode de Fresnel correspondent donc à des parois de domaines dans le cas de systèmes

à aimantation planaire. Il est possible d'ajuster la défocalisation afin d'obtenir le meilleur compromis entre la sensibilité (qui augmente avec la défocalisation) et la résolution latérale (qui diminue). Une représentation du champ induit peut être construite par une technique appelée TIE (*Transport-of-Intensity Equation*) [118] à partir de seulement trois images focalisée, sous-focalisée et sur-focalisée (avec la même défocalisation). Des focalisations différentes induisant des déplacements et rotations de l'image, il est nécessaire de réaligner les images entre elles avant tout traitement. En pratique, le logiciel Digital-Micrograph permet de recadrer les images entre elles et d'obtenir la reconstruction des champs induits. Un exemple réel de contrastes de Fresnel observés dans une tricouche Pt(50 Å)/Co(50 Å)/Pt(20 Å) est présenté figure 2.4b.

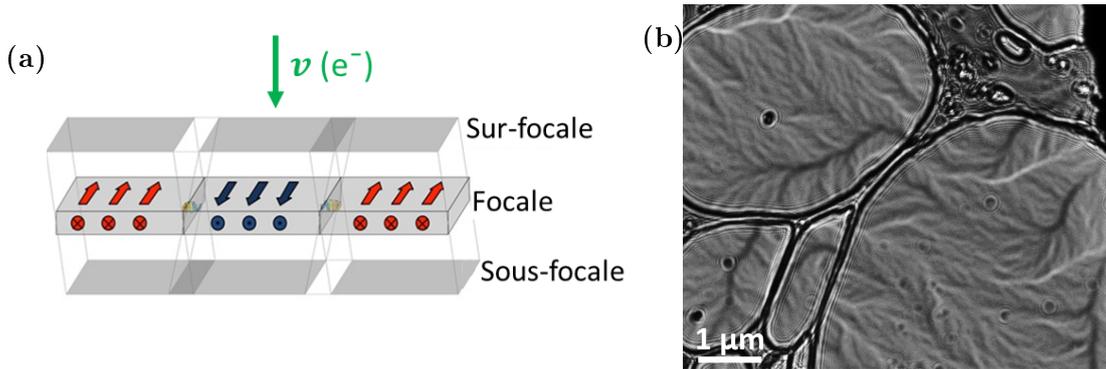


Fig. 2.4 – *a)* Schéma de principe des contrastes de Fresnel. *b)* Exemple de contrastes de Fresnel dans une tricouche Pt(50 Å)/Co(50 Å)/Pt(20 Å) déposée par pulvérisation cathodique sur une grille MET observés avec une défocalisation de 300 μm.

Dans la situation de systèmes à aimantation perpendiculaire, seuls les moments magnétiques dans les parois sont dans le plan. Dans le cas des parois de Néel, le faisceau d'électron est défléchi le long de la paroi, et ne crée pas de contraste de Fresnel. Il est alors nécessaire d'incliner l'échantillon pour avoir accès aux composantes hors du plan de l'échantillon et observer un contraste, comme le montre la figure 2.5 [119]. Ceci permet de discriminer un type de paroi par rapport à l'autre, mais rend compliqué l'observation des parois, *a fortiori* des skyrmions, de Néel.

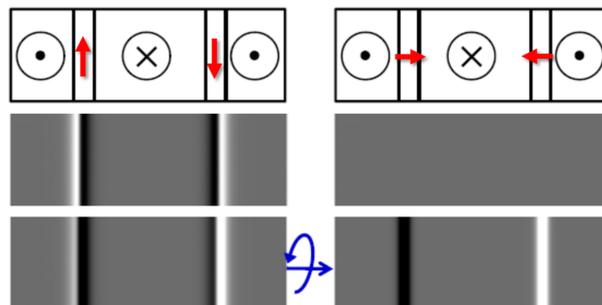


Fig. 2.5 – *Simulations de contrastes de Fresnel créés par des domaines à aimantation perpendiculaire séparés par des parois de Bloch (gauche) et de Néel (droite) avec une inclinaison de l'échantillon de 0° (haut) et de 30° (bas) selon la direction indiquée par la flèche bleue [119].*

La méthode de Fresnel permet d'obtenir des images immédiatement interprétables lors de l'observation, permettant l'étude des comportements dynamiques tels que le mouvement d'une paroi sous l'application d'un champ magnétique. Cependant, dans le cas de couches très minces ou à faible induction magnétique, il est nécessaire d'appliquer une défocalisation importante, ce qui détériore considérablement la résolution qui peut alors facilement atteindre plusieurs dizaines de nanomètres.

La méthode DPC en mode METB consiste en la mesure de la déviation du faisceau d'électrons (convergent dans ce mode) en chaque point de la zone de l'échantillon observée (voir figure 2.6). Traditionnellement, cette déviation est mesurée indirectement à l'aide d'un détecteur 4 cadrans, par soustraction deux à deux de l'intensité du signal reçu par chacun des cadrans. Aujourd'hui, les capteurs CCD présents sur tous les microscopes permettent de mesurer directement la déflexion du faisceau avec une grande précision (dépendant uniquement de la taille des pixels) et ainsi d'atteindre des sensibilités plus grandes [120]. Les mesures en mode METB sont techniquement plus difficiles à mettre en œuvre. De plus, le temps d'acquisition d'une image est de plusieurs minutes. Cette technique ne permet donc pas d'observer des effets dynamiques, et peut en outre être perturbée par des effets de déviation durant le temps d'acquisition. Cependant, avec les compétences techniques actuelles, la méthode DPC en mode METB permet d'atteindre une résolution latérale atomique (contre plusieurs dizaines de nanomètre pour la méthode de Fresnel) et des sensibilités magnétiques considérables (de l'ordre de 1 T.nm).

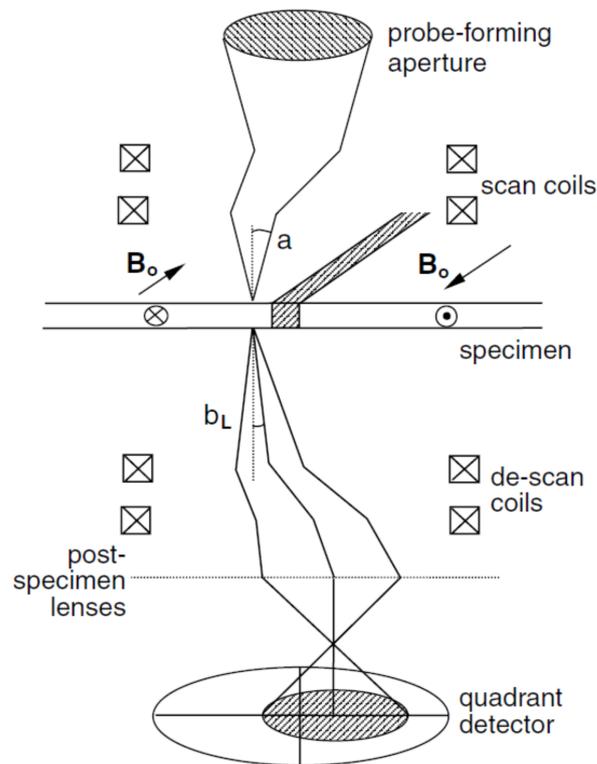


Fig. 2.6 – Schéma de principe de la méthode DPC en mode METB [121]

Ces deux techniques de microscopie électronique en transmission en mode Lorentz sont donc complémentaires. La première permet d'obtenir des images en grand champ très rapidement, mais avec une résolution latérale faible, tandis que la deuxième offre une résolution et une sensibilité très grandes, avec des temps de mesure et de traitement d'image beaucoup plus importants. De plus, avec la deuxième technique, la déviation du faisceau d'électron est mesurée point par point, permettant de caractériser la direction du champ magnétique induit quelle que soit la direction du champ induit voisin. La méthode DPC en mode METB permet alors de discriminer des parois de Néel des parois de Bloch sans nécessité d'incliner l'échantillon observé.

C. Autres techniques

D'autres techniques existent pour caractériser l'arrangement des moments magnétiques d'un système. En effet, les équipements d'imagerie magnétique, en particulier les microscopes électroniques, sont assez peu répandus. D'autre part, les appareils utilisés au cours de cette thèse ne permettent pas d'accéder aux conditions nécessaires (basse température) à la formation de textures magnétiques au sein du système FeGe. Des techniques telles que la spectroscopie Mössbauer et la spectroscopie par rotation des spins du muons permettent d'obtenir des informations sur la distribution de l'orientation des moments magnétiques au sein d'un système. Comme avec la diffraction de rayons X, les informations ainsi obtenues sont moyennées sur un grand volume et nécessitent donc une bonne homogénéité au sein de nos échantillons. La spectroscopie de Brillouin est également une technique puissante pour caractériser les matériaux magnétiques, en particulier pour évaluer la constante de DMI. Le principe de fonctionnement de ces différentes techniques de caractérisation magnétique sera décrit plus loin.

II Mesures de magnéto-transport

La détection et la manipulation du renversement d'aimantation dans des nanostructures est un problème crucial pour la recherche fondamentale et pour les applications à des dispositifs de spintronique. Les mesures de magnéto-transport offrent de très bonnes résolutions spatiales et temporelles et sont alors très prisées (simples, efficaces et rapides) pour détecter les renversements d'aimantation dans les nanostructures. Les mesures de magnéto-transport permettent également de caractériser les effets liés au couplage spin-orbite au sein des matériaux.

La lithographie des couches minces permet d'optimiser les mesures de magnéto-transport. Une structure simple de gravure est la double croix de Hall qui permet de mesurer simultanément les résistivités longitudinale et de Hall. La figure 2.7 présente un schéma d'une double croix de Hall avec le montage électrique utilisé pour les mesures de magnéto-transport réalisées au cours de cette thèse. Un courant alternatif I_{AC} est appliqué le long de la barre principale de la double croix, et les résistances longitudinales R_{xx} et de Hall R_{xy} sont mesurées par détection synchrone. Les résultats présentés par la suite ont été mesurés avec le champ magnétique appliqué hors plan.

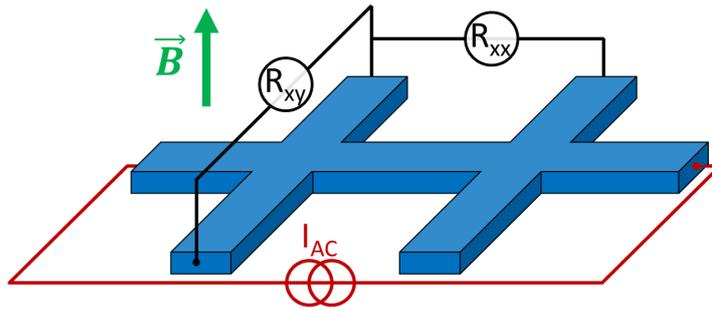


Fig. 2.7 – Schéma du montage de mesures de magnéto-transport.

A. Magnétorésistances longitudinales

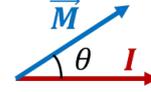
Les effets de magnétorésistance, basés sur l'interaction entre des courants électriques et l'aimantation, fournissent une technique facile et rapide d'étude de renversement d'aimantation dans des nanostructures. Nous ne considérerons ici que les effets de magnétorésistance due à l'aimantation, et non à l'induction magnétique. La magnétorésistance longitudinale est composée de trois termes qui sont la magnétorésistance anisotrope, la résistance de paroi de domaines et la magnétorésistance de magnons. Ces trois composantes de la magnétorésistance ont des origines différentes et ne contribuent pas de la même façon.

1) Magnétorésistance anisotrope

La magnétorésistance anisotrope (AMR) est un effet de variation de résistivité dans des matériaux ferromagnétiques en fonction de l'angle θ formé entre les lignes de courant et la direction de l'aimantation. L'effet d'AMR provient du couplage spin-orbite et peut

atteindre quelques % à température ambiante dans des alliages métalliques à base de Fe, de Co et de Ni [122]. La variation de résistivité avec l'angle θ peut s'exprimer :

$$\rho_{AMR} = \rho_{\perp} + (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) \cos^2(\theta) \quad [122]$$



avec ρ_{\perp} et ρ_{\parallel} les résistivités obtenues lorsque l'aimantation est perpendiculaire ou parallèle au courant. En général $\rho_{\parallel} > \rho_{\perp}$. Dans les systèmes à aimantation planaire, l'AMR est alors très sensible aux composantes d'aimantation pendant le processus de renversement. L'AMR a donc été beaucoup utilisée pour étudier le renversement d'aimantation dans des systèmes à aimantation planaire, en particulier dans des nanostructures. L'AMR offre également la possibilité de détecter la présence et le type de parois de domaines dans ces systèmes. Pour des systèmes à aimantation perpendiculaire, les moments magnétiques sont perpendiculaires à la direction du courant, sauf potentiellement à l'intérieur des parois magnétiques. La contribution éventuelle d'AMR se situe donc dans les parois de domaines, et est très faible par rapport à celle des autres magnétorésistances longitudinales.

2) Résistance de paroi

La résistance de paroi de domaine (DWR, pour *domain wall resistance*) [123, 124, 125] est toujours positive et correspond à la difficulté qu'a le spin de l'électron à suivre la réorientation des moments magnétiques dans la paroi. Ceci conduit à un mélange de population de spins et à un accroissement du phénomène de diffusion de spins, augmentant ainsi la résistivité dans la zone de la paroi de domaine. Cette contribution à la magnétorésistance est intrinsèque aux parois de domaines, et nettement plus importante que la contribution de l'AMR dans les parois des matériaux à aimantation perpendiculaire (DWR ~ 10 %). De plus, contrairement à l'AMR, la DWR augmente lorsque la taille de la paroi diminue. En effet, plus la paroi est petite, plus le gradient de moment magnétique est important, et plus le spin de l'électron a du mal à suivre la réorientation des moments magnétiques.

Ainsi, dans le cas de systèmes à aimantation perpendiculaire, l'AMR et la DWR sont toutes deux causées par la présence de parois de domaines. La contribution de la DWR est *a priori* plus importante que l'AMR, en particulier pour des parois de domaines étroites.

3) Magnétorésistance de magnons

La magnétorésistance de magnons (MMR) est la contribution des magnons à la résistivité d'un matériau ferromagnétique. Le magnon est une quasi-particule associée aux ondes de spins, de la même façon que le phonon est associé aux vibrations du réseau cristallin. Le phénomène de la MMR peut être décrit simplement. La figure 2.8 résume la dépendance en champ magnétique de la MMR pour un champ magnétique appliqué dans la direction facile d'aimantation. À température non nulle, l'agitation thermique donne lieu à des ondes de spins aléatoires (population de magnons). L'interaction électrons-magnons participe à la diffusion des électrons et donc à la résistivité. L'application d'un champ magnétique fort (1) rigidifie les moments autour du champ, ce qui réduit l'amplitude des ondes de spins. Ceci correspond à une diminution de la population de magnons et par

conséquent aboutit à la réduction de la résistivité [126]. À champ nul (2), l'amplitude des ondes de spins, et donc la population de magnons, augmente et la résistivité est plus élevée. Juste avant le renversement d'aimantation (3), le champ magnétique est antiparallèle aux moments magnétiques, les magnons sont le plus excités et la résistivité est la plus élevée. Enfin, l'aimantation se retourne parallèlement au champ magnétique appliqué (4), les magnons sont ainsi plus rigides et la résistivité à nouveau plus faible.

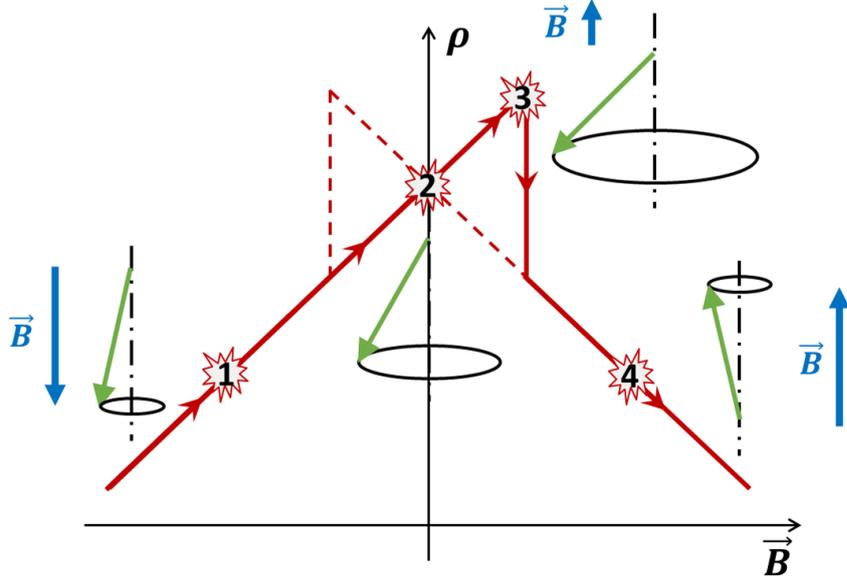


Fig. 2.8 – Cycle de magnétorésistivité due aux magnons en fonction du champ magnétique appliqué dans la direction d'aimantation facile de l'échantillon.

La résistivité due aux magnons est proportionnelle au champ magnétique appliqué ainsi qu'à l'aimantation relative du système : $\rho_{MMR} = \alpha \frac{M}{M_S} B$ [127], où le facteur α , dont l'inverse caractérise la raideur (ou la masse) des magnons, est négatif et tend à s'annuler à basse température [126]. La mesure de la MMR est alors une méthode efficace pour étudier le renversement d'aimantation, en particulier pour détecter le mouvement et la position exacte d'une paroi de domaine dans un nanofil [128].

B. Mesures de Hall

1) Effets Hall ordinaire et extraordinaire

Dans les matériaux ferromagnétiques, les effets Hall consistent en la somme de deux contributions : l'effet Hall ordinaire (EHO) et l'effet Hall extraordinaire (EHE). Le premier terme est proportionnel au champ magnétique appliqué hors plan, et le second à l'aimantation perpendiculaire du système mesuré. La résistivité de Hall s'exprime alors :

$$\rho_{xy} = R_0 B + \mu_0 R_S M_{\perp}$$

avec R_0 et R_S les coefficients d'EHO et d'EHE respectivement, B le champ magnétique appliqué hors plan, et M_\perp l'aimantation perpendiculaire. L'EHO est associé à la force de Lorentz agissant sur les porteurs de charges, tandis que l'EHE est dû au couplage spin-orbite des électrons avec les moments magnétiques présents dans le milieu [35]. Cet effet est beaucoup plus grand que l'EHO.

Pour des matériaux à aimantation perpendiculaire, la mesure des effets Hall constitue une technique puissante pour la détection du renversement d'aimantation dans des nanostructures, ainsi que pour la caractérisation du mouvement de parois de domaines magnétiques. L'EHE permet de possibles applications pour des capteurs magnétiques ou dans des dispositifs à mémoire magnétique non volatile.

2) Effet Hall topologique

L'origine de l'effet Hall topologique (EHT) est l'acquisition d'une phase, appelée phase de Berry, par l'électron de conduction lors de son passage à travers une texture magnétique non triviale. L'image 2.9a schématise le passage d'un électron à travers un skyrmion. Son spin suit adiabatiquement l'aimantation de la texture magnétique, acquérant ainsi cette phase de Berry [129]. La phase de Berry, complexe à appréhender, peut être vue comme un flux magnétique émergent $\Phi = 2\Phi_0 = h/e$, avec Φ_0 le quantum de flux magnétique, h la constante de Planck et e la charge élémentaire. La surface d'un skyrmion étant de l'ordre de 10^{-15} m^2 , le champ magnétique émergent est alors de l'ordre de $\frac{2 \times 2 \cdot 10^{-15}}{10^{-15}} = 4 \text{ T}$. De cette façon, l'EHT peut être assimilé à un effet Hall ordinaire créé par le champ magnétique émergent des skyrmions.

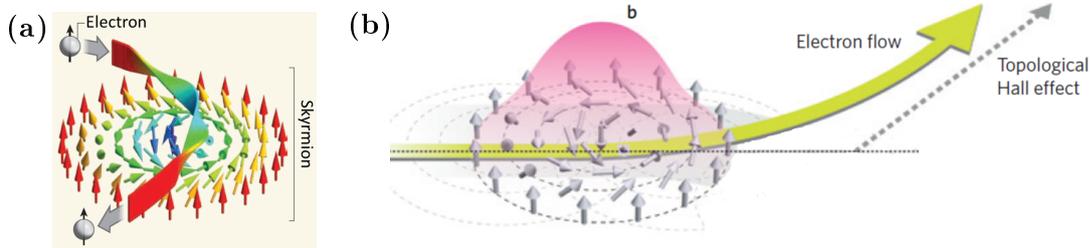


Fig. 2.9 – *a) Schéma expliquant l'acquisition de la phase de Berry de l'électron par son passage à travers un skyrmion [130]. b) Schéma de l'EHT exercée par le champ magnétique émergent d'un skyrmion (en rose) sur un courant de charge [37].*

D'un point de vue pratique, l'EHT est une contribution supplémentaire à l'effet Hall classique (ordinaire+extraordinaire), caractéristique de la présence d'une texture magnétique non triviale, telle qu'un skyrmion. Cette contribution supplémentaire constitue alors un moyen efficace, rapide et économe de détection de skyrmions, et possède donc un fort potentiel pour des applications techniques en spintronique. Cependant, le signal peut être faible et difficile à détecter en fonction du matériau étudié. Il est par exemple particulièrement élevé pour le MnGe ($\rho_{xy}^T = 160 \text{ n}\Omega\cdot\text{cm}$ [58]), mais faible pour le MnSi ($\rho_{xy}^T = 4.5 \text{ n}\Omega\cdot\text{cm}$ [19]). En comparaison, la résistivité d'EHE se situe en général aux alentours de $0.1\text{-}1 \mu\Omega\cdot\text{cm}$.

Les mesures d'EHT sont très largement utilisées pour établir le diagramme de phase en champ et en température d'un matériau hélimagnétique [19]. Des mesures d'EHT ont alors été menées sur des couches minces de FeGe afin de vérifier la présence de la phase de skyrmions avant de procéder à de plus amples caractérisations.

III Caractérisations magnétiques des couches minces de FeGe

Le comportement magnétique des couches minces de FeGe a été étudié par différentes techniques. Dans un premier temps, une caractérisation magnétique par magnétométrie permettra d'extraire les paramètres magnétiques tels que l'aimantation à saturation et l'anisotropie magnétique, et ainsi de confirmer la bonne qualité cristalline de nos échantillons. Des mesures de Hall seront ensuite réalisées afin de vérifier la présence de l'effet Hall topologique et donc de skyrmions dans nos couches minces. Pour terminer, les premiers résultats obtenus par spectroscopie Mössbauer et par spectroscopie de muons seront exposés.

A. Effet Hall topologique dans les couches minces de FeGe

1) Extraction des paramètres magnétiques

Les paramètres magnétiques d'une couche mince de FeGe ont été extraits par magnétométrie à SQUID. Les valeurs relevées sont normalisées par l'épaisseur de 112 nm mesurée par réflectivité de rayons X. L'alliage de Fe-Si formé à l'interface entre le FeGe et le substrat de Si, supposé FeSi B20, est considéré comme non magnétique. Il sera montré plus tard que cette hypothèse est justifiée. La figure 2.10a présente la dépendance en température de l'aimantation spontanée de la couche mince de FeGe, et sa dérivée $\frac{dM}{dT}$, exposant une température de transition $T_C = 277.5 \pm 2.5$ K proche de 278 K attendus. Les cycles d'hystérésis mesurés dans le plan et hors plan, présentés sur la figure 2.10b, permettent d'extraire une aimantation à saturation de 360 ± 10 kA/m, soit $1 \pm 0.03 \mu_B/\text{Fe}$ (valeur prévue par Yamada *et al.* [131]), un champ coercitif hors plan de 8 mT, et une anisotropie effective facile dans le plan de -75 ± 5 kJ/m³. Ces valeurs sont cohérentes avec celles de la littérature [74, 99] et permettent alors de confirmer la bonne qualité cristalline de nos couches minces de FeGe.

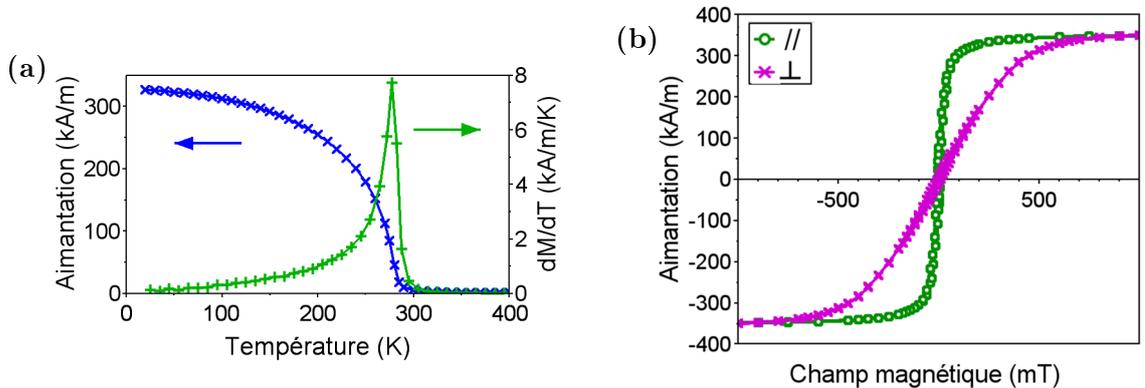


Fig. 2.10 – Mesures d'aimantation d'une couche mince de 112 nm de FeGe réalisées au magnétomètre à SQUID : a) Aimantation dans le plan et sa dérivée en fonction de la température (avec 100 mT appliqué dans le plan), b) cycles d'hystérésis hors plan et dans le plan à 100 K.

Des demi-cycles d'hystérésis hors-plan ont été mesurés à différentes températures (figure 2.11) afin de pouvoir extraire la composante d'EHT de nos mesures de Hall.

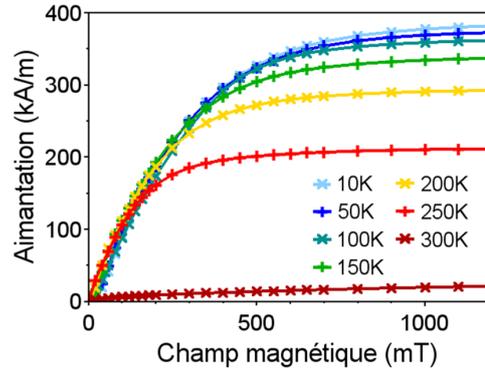


Fig. 2.11 – Cycles d'hystérésis hors plan mesurés au magnétomètre à SQUID à différentes températures.

2) Magnéto-transport

Les magnéto-résistances et effets Hall d'une couche mince de 73 nm (proche de la périodicité des hélices évaluée dans la littérature à 70 nm) de FeGe déposée sur Si (111) ont été mesurés. Une double croix de Hall de 500 nm de large a été tracée par faisceau d'électron dans une résine positive couvrant la couche mince de FeGe. Après dépôt de 70 nm d'Al, la résine a été dissoute. La couche de FeGe a alors été lithographiée par gravure ionique. Les résistances de Hall et magnéto-résistances sont mesurées simultanément par la technique de détection synchrone, avec l'application d'un courant alternatif de 100 μA à 72 Hz, et un champ magnétique variant de -1.5 à 1.5 T perpendiculaire à la surface de l'échantillon. La mesure de résistivité longitudinale en fonction de la température (figure 2.12) traduit un comportement métallique de la couche mince de FeGe. La résistivité mesurée à température ambiante est de l'ordre de 170 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$, soit presque deux fois plus faible que les valeurs rencontrées dans la littérature pour des épaisseurs similaires [74, 99]. Le saut de résistivité visible aux alentours de 260 K (indiqué par la flèche) n'a été observé qu'une fois et est donc un artefact de mesure. Le ratio de résistivité $\rho_{xx}(300\text{ K})/\rho_{xx}(10\text{ K}) = 173/108 = 1.6$ est quant à lui beaucoup plus faible que les valeurs reportées dans la littérature, de l'ordre de 5-7.

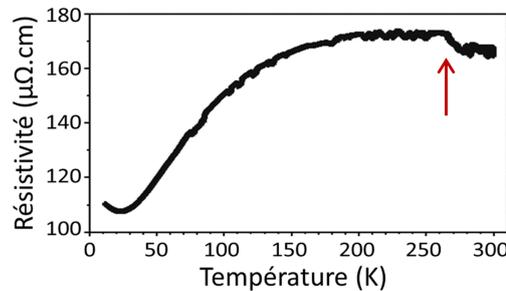


Fig. 2.12 – Dépendance en température de la résistivité longitudinale mesurée dans une couche mince de FeGe de 73 nm.

Les cycles de résistivités longitudinales et de Hall ont été mesurés pour différentes températures, variant de 10 K à 300 K. Le système de régulation et de mesure de la température de l'équipement de magnéto-transport est précis uniquement à basse température. Les valeurs de températures reportées sur les graphes servent donc uniquement d'indication de l'évolution relative de la température. Les mesures de résistivités longitudinales en fonction du champ présentées sur la figure 2.13a montrent une magnétorésistance maximale de 0.5 % à 12 K. Hors plan, le champ de saturation B_{sat} est de l'ordre de 1 T, dépendant de la température. Pour un champ magnétique inférieur à B_{sat} , on s'attend à observer une diminution de la résistance en augmentant le champ. En effet, à champ nul, la texture magnétique est *a priori* composée d'hélices dont l'axe de propagation est la direction $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20, c'est-à-dire perpendiculaire au plan de la couche dans notre cas. L'anisotropie de forme, qui tend à coucher l'aimantation dans le plan de la couche mince, participe également à imposer une direction de propagation des hélices magnétiques selon la normale au plan. Les moments magnétiques forment alors un angle θ variable avec le courant, donnant naissance à un terme de magnétorésistance anisotrope (AMR) $\rho_{AMR} = \rho_{\perp} + (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) \cos^2(\theta)$. Lorsque le champ magnétique augmente, la texture magnétique passe doucement de la phase hélicoïdale à la phase conique, alignant les moments magnétiques avec le champ, c'est-à-dire perpendiculaire au plan de la couche et au courant. L'AMR diminue donc continuellement avec le champ magnétique jusqu'à saturation. Ce phénomène est observé à toutes les températures inférieures à T_C .

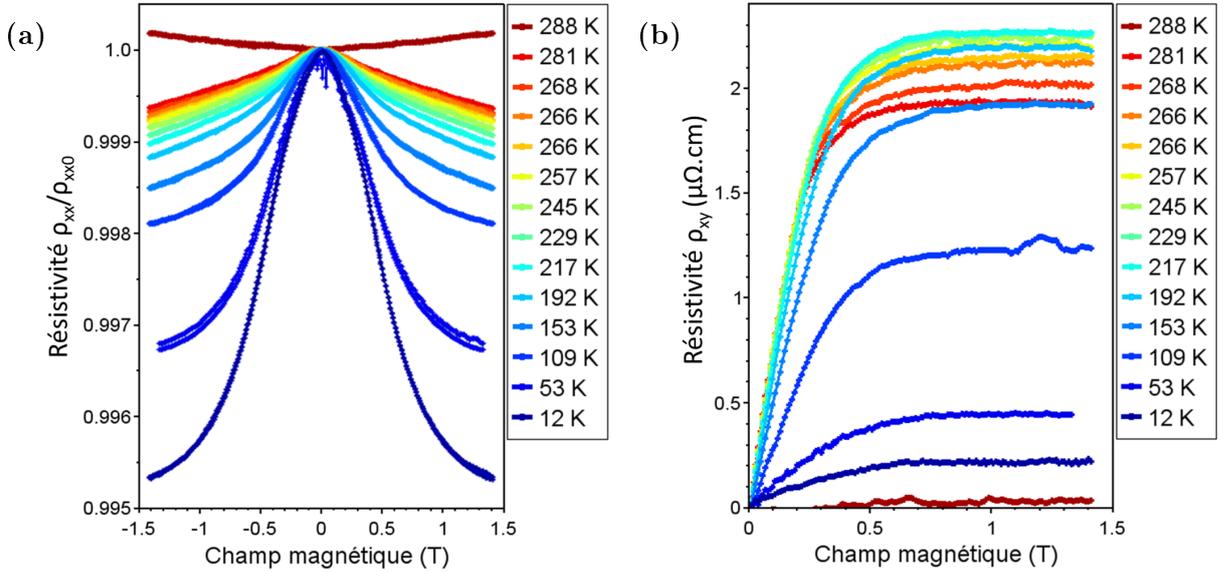


Fig. 2.13 – *a)* Magnétorésistances et *b)* résistivités de Hall extraordinaires mesurées à différentes températures.

La figure 2.13b présente les résistivités de Hall mesurées à différentes températures. Seule la partie impaire du signal est présentée ici afin de s'affranchir des effets de magnétorésistance. La résistivité de Hall ρ_{xy} est la somme des contributions de l'effet Hall ordinaire (EHO) $\rho_{xy}^O = R_0 B$, l'effet Hall extraordinaire (EHE) $\rho_{xy}^E = R_S \mu_0 M$ et potentiellement l'effet Hall topologique (EHT) ρ_{xy}^T , nul à haut champ. On peut alors facilement extraire des mesures de Hall le coefficient d'EHO $R_0 = 0.18 \mu\Omega \cdot \text{cm}/\text{T}$ (pente de la branche de ρ_{xy} à haut champ), ainsi que la résistivité d'EHE (ordonnée à l'origine de l'ajustement

linéaire de ρ_{xy} à haut champ). La dépendance en température de la résistivité d'EHE est reportée sur la figure 2.14 et présente un maximum de $2.3 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ à 220 K. La chute de la résistivité d'EHE observée à 281 ± 5 K correspond à la transition magnétique du FeGe B20 attendue à 278 K.

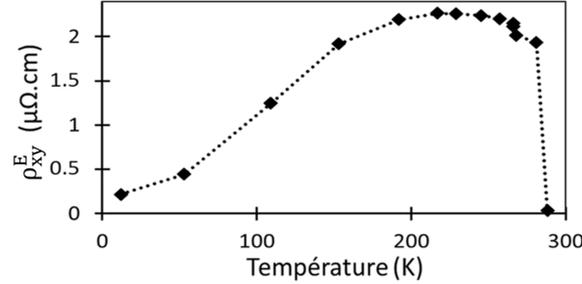


Fig. 2.14 – Dépendance en température de la résistivité d'EHE.

3) Extraction de l'effet Hall topologique

Dans le cas de matériaux héli magnétiques tels que le FeGe B20, un terme d'effet Hall topologique (EHT) est attendu. Pour extraire cet effet des effets Hall ordinaire et extraordinaire, il est nécessaire de soustraire le signal de ces deux effets $R_0B + R_S\mu_0M$ aux mesures de Hall réalisées. La technique utilisée ici est la même que celle utilisée dans la littérature [58, 74, 99]. La magnétorésistance étant très faible ($< 0.5\%$), on considère la constante d'EHE $R_S = S_A\rho_{xx}^2$ (on néglige la dépendance linéaire en ρ_{xx}), avec S_A indépendant du champ magnétique. On a alors $\rho_{xy} = R_0B + S_A\rho_{xx}^2\mu_0M + \rho_{xy}^T$. À haut champ le système est saturé et $\rho_{xy}^T = 0$. Les constantes R_0 et S_A sont alors déterminées précisément par ajustement linéaire à haut champ de $\rho_{xy}/B = R_0 + S_A\rho_{xx}^2\mu_0M/B$. La résistivité d'EHT est alors extraite par soustraction de $R_0B + S_A\rho_{xx}^2\mu_0M$ (avec M l'aimantation mesurée précédemment par magnétométrie à SQUID) à la résistivité de Hall ρ_{xy} mesurée. La figure 2.15 présente un exemple de cette procédure pour une température de 250 K. Les données brutes de résistivité de Hall ρ_{xy} sont tracées en vert, l'ajustement $R_0B + S_A\rho_{xx}^2\mu_0M$ est tracé en bleu, et en rouge est représentée la soustraction des deux courbes qui constitue la résistivité de Hall topologique.

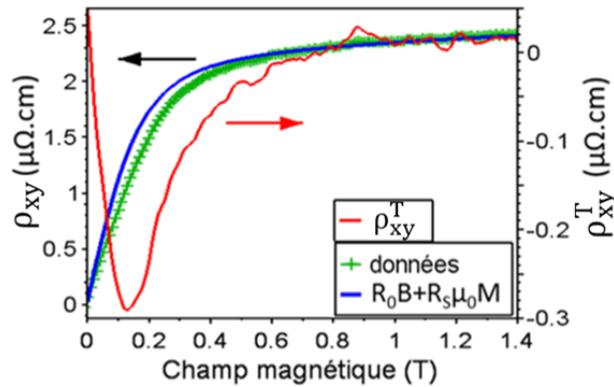


Fig. 2.15 – Résistivité de Hall mesurée à 250 K (vert), comparée à l'ajustement $R_0B + R_S\mu_0M$ (bleu). La différence donne la résistivité liée à l'effet Hall topologique (rouge).

La même procédure a été suivie pour différentes températures (figure 2.16a). Les valeurs des minima et leurs positions en champ B_m sont reportées dans les figures 2.16b) et c). On observe une décroissance du champ magnétique B_m de 230 à 110 mT avec la température, cohérente avec les mesures reportées précédemment dans la littérature. La résistivité d'EHT atteint un maximum de $0.34 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ à 245 K. Cette valeur, deux fois plus élevée que les premières reportées dans la littérature [74, 99], témoigne d'une densité de skyrmions plus importante, et ainsi d'une bonne qualité de nos couches minces de FeGe. Les dernières mesures d'EHT réalisées sur FeGe révèlent cependant une résistivité d'EHT beaucoup plus élevée, de l'ordre de $1 \mu\Omega\cdot\text{cm}$, et maximale à 275 K [76].

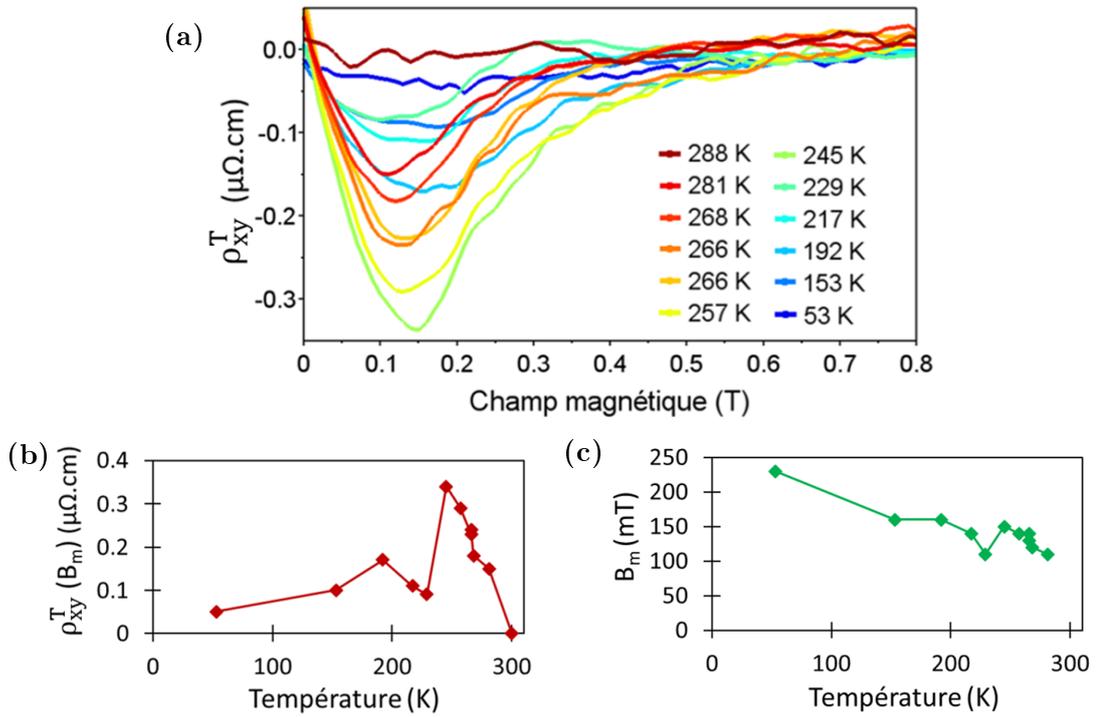


Fig. 2.16 – *a)* Résistivités de Hall topologique à différentes températures. *b)* Dépendance en température de l'amplitude de l'EHT et *c)* des valeurs de champs B_m .

En conclusion, les paramètres magnétiques mesurés par magnétométrie à SQUID, conformes aux valeurs reportées dans la littérature pour le FeGe B20 volumique, ont permis de confirmer la bonne qualité cristalline des couches minces de FeGe réalisées par pulvérisation cathodique. Les mesures de magnétorésistance témoignent d'une transition douce de la phase hélicoïdale à la phase conique. Enfin, les résistivités de Hall mesurées à des températures variées ont permis d'extraire la dépendance en température de l'effet Hall topologique présent dans les couches minces de FeGe, avec une valeur maximale de résistivité d'EHT de $0.34 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ relevée à 245 K. La phase de skyrmions est alors bien présente dans nos couches minces de FeGe déposées par pulvérisation cathodique. L'étendue de la phase de skyrmion est similaire aux résultats reportés dans la littérature pour des couches minces de FeGe d'épaisseur proche, exceptée pour la température où ρ_{xy}^T est maximale, qui est de 245 K dans notre cas contre 150 K pour les premières mesures d'EHT reportées sur couches minces de FeGe [74, 99].

B. Direction de propagation des hélices magnétiques déterminée par spectroscopie Mössbauer

1) Introduction à la spectroscopie Mössbauer

La spectroscopie Mössbauer est une technique basée sur l'absorption de rayons γ par les noyaux atomiques dans un solide. Elle permet d'étudier la structure hyperfine des niveaux d'énergie du noyau atomique et leurs perturbations sous l'effet de l'environnement chimique, électrique et magnétique de l'atome. La spectroscopie Mössbauer ne s'applique qu'à un nombre limité d'éléments chimiques, disposant d'une source appropriée. Le fer est un de ces éléments car la source de rayons γ ^{57}Co est adaptée à l'isotope 57 du fer (2 % dans le fer naturel). La spectroscopie Mössbauer est alors une technique précieuse pour l'étude de l'alliage FeGe.

L'acquisition d'un spectre Mössbauer consiste en la mesure de l'absorption des rayons γ par l'échantillon en fonction de leur énergie. L'énergie des γ émis par la source est fixe ($E_\gamma = 14.4$ keV pour une source ^{57}Co). L'effet Doppler de la vitesse relative v entre la source et l'échantillon est utilisé pour moduler l'énergie des rayons γ incidents avec une précision pouvant atteindre 10^{-9} eV. L'énergie des rayons γ incidents est alors $E_\gamma \pm \Delta E$ avec $\Delta E = \frac{v}{c}E_\gamma$, égal à 48 neV pour $v = 1$ mm/s, c étant la vitesse de la lumière. En spectroscopie Mössbauer les énergies sont exprimées en unité de vitesse. Dans le cas de la spectroscopie Mössbauer d'électron de conversion, technique utilisée ici, le principe repose sur la collection des électrons émis lors de la désexcitation des noyaux sondés pour des profondeurs maximales de 200 nm.

Les interactions hyperfines sont de l'ordre de 10^{-7} à 10^{-8} eV et peuvent être classées selon trois catégories. La première est le déplacement isomérique qui permet de caractériser l'environnement chimique de l'atome sondé. La position du spectre Mössbauer est donc unique pour un alliage donné, et constitue une signature du matériau mesuré. Cette technique peut alors permettre de confirmer la composition chimique d'une couche mince. Ensuite, la séparation quadrupolaire (figure 2.17a) témoigne de l'asymétrie des charges électriques environnantes. Enfin, la présence d'un champ magnétique environnant entraîne

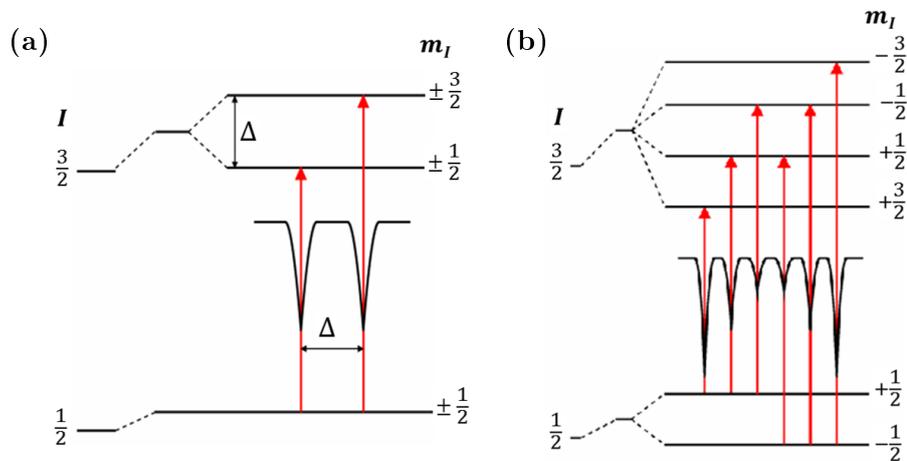


Fig. 2.17 – *a)* Division des niveaux d'énergie par couplage quadrupolaire, *b)* division des niveaux d'énergie par effet Zeeman.

la division des niveaux d'énergie en six par effet Zeeman (figure 2.17b). La séparation des pics du sextuplet ainsi formé, directement liée à la différence entre deux niveaux d'énergie ΔE , permet de quantifier le champ magnétique local ressenti par le noyau ($\Delta E = \mu_B B$). D'autre part, le rapport d'intensités de ces pics donne accès à l'orientation des moments magnétiques selon :

$$3 : \frac{4 \sin^2(\theta)}{1 + \cos^2(\theta)} : 1$$

avec θ l'angle entre le faisceau de rayons γ et le moment magnétique. La figure 2.18 présente les spectres Mössbauer obtenu dans trois cas particuliers d'orientation de moments magnétiques.*

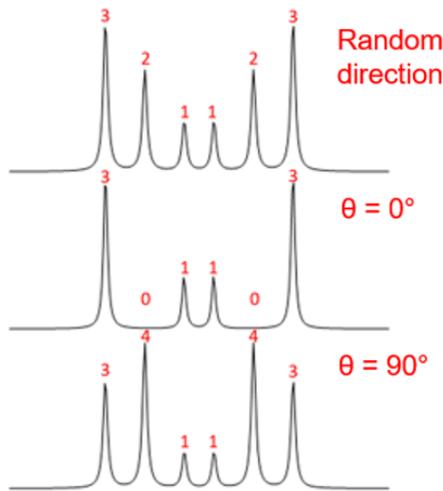


Fig. 2.18 – Correspondance entre le rapport d'intensités des pics et l'angle θ des moments magnétiques avec le faisceau incident.

La spectroscopie Mössbauer permet de mesurer la distribution angulaire de champ hyperfin local. Cette technique pourrait alors permettre de discriminer la phase de skyrmions des phases hélicoïdale et conique et ainsi d'établir précisément le diagramme de phase des matériaux héliomagnétiques. Dans le cas particulier du FeGe, la spectroscopie Mössbauer permettrait de détecter le changement de direction de propagation des hélices magnétiques avec la température. En effet, il a été observé que les hélices magnétiques se propagent le long de la direction $\langle 100 \rangle$ à haute température et le long de la direction $\langle 111 \rangle$ à basse température, avec une transition attendue entre 210 et 245 K [133]. Il n'existe pas à notre connaissance de caractérisation de la phase de skyrmions par spectroscopie Mössbauer.

2) Étude de couches minces de FeGe par spectroscopie Mössbauer

Les mesures Mössbauer et leurs analyses ont été réalisées par Florian Appert, en thèse à l'université de Rouen sous la direction de Jean Juraszek.

Des spectres Mössbauer ont été mesurés à température ambiante sur différentes couches minces de FeGe. La figure 2.19a présente les spectres de deux échantillons : 1=FeGe (100 nm, 450 °C)/Fe (1 nm, 450 °C), 2=FeGe (100 nm, 375 °C)/Fe (7 Å, 450 °C). Ces deux dépôts ont été réalisés avec une pression d'argon de 5.9×10^{-3} mbar et des taux de dé-

*. Se référer à [132] pour plus de précisions sur la spectroscopie Mössbauer

pôt de 0.5 Å/s. Les spectres obtenus ont été ajustés à l'aide de lorentziennes*. Un premier grand pic situé à 0.48 mm/s est identifié. Ce décalage isomérique correspond parfaitement à la signature de la phase paramagnétique du FeGe B20 [134]. La largeur à mi-hauteur de ce pic de 0.3 mm/s correspond à la résolution instrumentale du spectromètre. Cela témoigne d'une excellente homogénéité des échantillons sur l'épaisseur analysée qui est de 100 à 150 nm. Dans le cas de l'échantillon 1, un petit épaulement est observé légèrement en dessous de 0 mm/s. L'ajout d'une double lorentzienne (représentée en pointillés verts) est alors nécessaire à l'ajustement du spectre Mössbauer. La position et l'écartement de ce doublet (reportés dans le tableau 2.19b) correspond parfaitement à la phase paramagnétique du FeSi B20 [135], identifié précédemment dans cet échantillon par diffraction de rayons X.

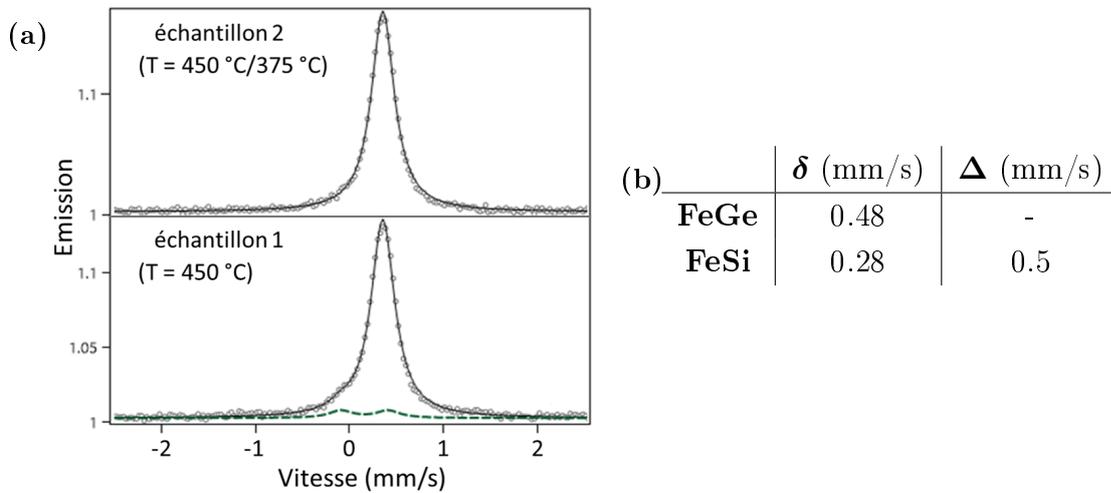


Fig. 2.19 – *a)* Spectres Mössbauer de deux couches minces de FeGe déposées selon des conditions légèrement différentes (précisées dans le texte). Les données sont ajustées par la courbe noire. *b)* Paramètres des spectres ajustés, correspondant aux phases paramagnétiques du FeGe B20 et du FeSi B20. δ est le déplacement isomérique (décalage du pic par rapport à 0), Δ est l'éclatement quadrupolaire.

Des spectres Mössbauer ont ensuite été réalisés sur l'échantillon 2 à des températures variant de 100 à 300 K. L'évolution des spectres avec la température est présentée sur la figure 2.20a. Le spectre à température ambiante est ajusté à l'aide d'un singulet caractéristique de la phase paramagnétique du FeGe B20. L'ajout d'un doublet paramagnétique lié au FeSi B20 (en bleu) n'est pas nécessaire pour ce spectre mais le devient à basse température. On remarque par ailleurs une dépendance avec la température de la position et du décalage quadrupolaire du doublet du FeSi, en accord avec les résultats reportés dans la littérature [136]. Le spectre à 270 K présente un éclatement du singulet en un sextuplet, traduisant un début de mise en ordre magnétique. La transition n'est pas complète car il est toujours nécessaire de prendre en compte un singulet paramagnétique. Le rapport d'intensités des raies du sextuplet est particulièrement intéressant ici. En effet, en l'absence de texture magnétique, le rapport d'intensités serait 3 : 2 : 1. Dans notre cas, le rapport d'intensités est proche de 3 : 4 : 1, traduisant une orientation des moments

*. Ajustements réalisés par Florian Appert de l'université de Rouen

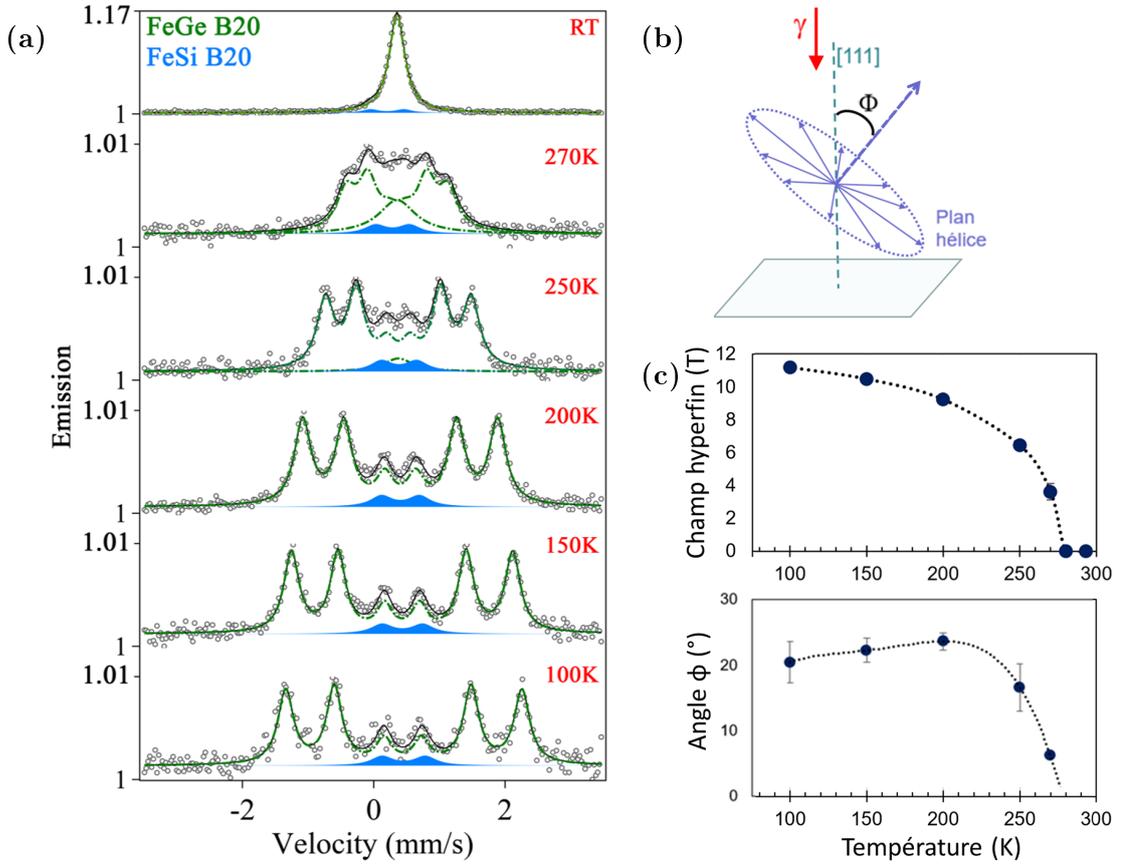


Fig. 2.20 – *a)* Mesures Mössbauer brutes d'une couche mince de 100 nm de FeGe. *b)* Schéma représentant l'angle ϕ entre l'axe du faisceau de rayons γ (normal au plan de l'échantillon) et l'axe des hélices magnétiques (en supposant que le système se trouve bien dans un état héliomagnétique). *c)* Dépendance en température du champ hyperfin et de l'angle ϕ .

magnétiques dans le plan de l'échantillon, c'est-à-dire une direction de propagation des hélices magnétiques selon la direction $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20. Cela va à l'encontre des observations de Lebech *et al* [133], mettant en évidence une direction de propagation des hélices magnétiques selon $\langle 100 \rangle$ à haute température (> 245 K). À 250 K, un singulet paramagnétique est encore nécessaire au bon ajustement du spectre, indiquant que la transition magnétique n'est pas encore achevée. La transition est complète à 200 K, un unique sextuplet étant suffisant à l'ajustement du spectre. La séparation des pics du sextuplet ainsi que les rapports d'intensités ont été relevés précisément pour chacune des températures, permettant de quantifier le champ hyperfin ainsi que la direction de propagation des hélices magnétiques (représentée par l'angle Φ entre l'axe des hélices et la normale au plan de l'échantillon comme schématisé sur la figure 2.20b). Cela nécessite cependant de supposer que la texture magnétique des couches minces de FeGe à champ nul est bien la phase hélicoïdale prévue d'après les observations reportées dans la littérature pour ce genre d'échantillons, et que les moments magnétiques des hélices sont perpendiculaires à leur direction de propagation. Les dépendances en température du champ hyperfin et de la direction de propagation des hélices sont reportées sur la figure 2.20c. Le champ hyperfin

évolue de la même façon que l'aimantation spontanée avec la température, avec une valeur proche de 11 T à 100 K, et une chute à 0 T aux alentours de 280 K, cohérent avec la température de transition magnétique du FeGe B20. Ces valeurs sont en excellent accord avec des mesures réalisées précédemment sur une poudre de FeGe B20 [134]. L'orientation des hélices magnétiques est presque constante avec la température, et à 20° de l'axe perpendiculaire à la surface de l'échantillon, c'est-à-dire à 20° de la direction $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20.

En conclusion, les mesures de spectroscopie Mössbauer nous ont permis dans un premier temps de confirmer la nature de l'alliage de Fe-Si créé à l'interface entre la couche mince de FeGe B20 et le substrat de Si, ainsi que la bonne qualité et l'homogénéité de nos couches minces. Ces mesures ont permis d'autre part d'attester la présence d'une texture magnétique non triviale. Dans l'hypothèse où cette texture magnétique serait la phase hélicoïdale prévue dans la littérature, nous avons pu déterminer la direction de propagation des hélices magnétiques à 20° de la direction $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20, dépendant légèrement de la température. D'autre part, des mesures de spectroscopie Mössbauer sous champ sont actuellement en cours sur nos échantillons, menées par Florian Appert à l'université de Rouen. Un changement dans les rapports d'intensité des pics des spectres Mössbauer traduirait une transition entre les phases hélicoïdale, conique et de skyrmions, et permettrait ainsi d'établir un diagramme de phase en champ et en température précis des couches minces de FeGe.

C. Spectroscopie par rotation de spin du muon

1) Introduction à la spectroscopie de muons

La spectroscopie de muons (μ SR pour *muon spin rotation*) est utilisée pour sonder le champ magnétique à l'intérieur de la matière à un niveau microscopique dans le but d'obtenir des informations sur ses propriétés magnétiques et électroniques. La figure 2.22 résume le principe de fonctionnement des mesures μ SR.

Le muon est une particule élémentaire de la famille des leptons (comme l'électron) de charge $\pm e$ et de spin $1/2$. Nous nous intéresserons ici uniquement aux muons positifs μ^+ . Le muon est créé par désintégration d'un pion (temps de vie de 26 ns) émis par un noyau de carbone frappé par un proton de haute énergie (600 - 800 MeV). La création d'un muon nécessite alors l'utilisation d'un accélérateur de particules, rendant les expériences μ SR complexes et rares. Les lois de conservation de la quantité de mouvement et du moment cinétique impliquent que les muons issus de pions se désintégrant au repos sont polarisés à 100 % avec leur moment magnétique antiparallèle à leur moment linéaire (voir figure 2.21). Leur énergie est $E_\mu = 4.12$ MeV.

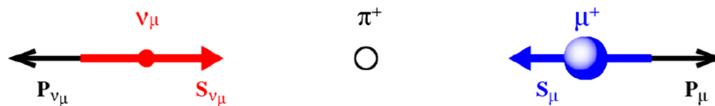


Fig. 2.21 – Représentation des moments linéaires \mathbf{P}_i et angulaires \mathbf{S}_i des muons et neutrinos émis par désintégration d'un pion. $\pi^+ \longrightarrow \nu_\mu + \mu^+$.

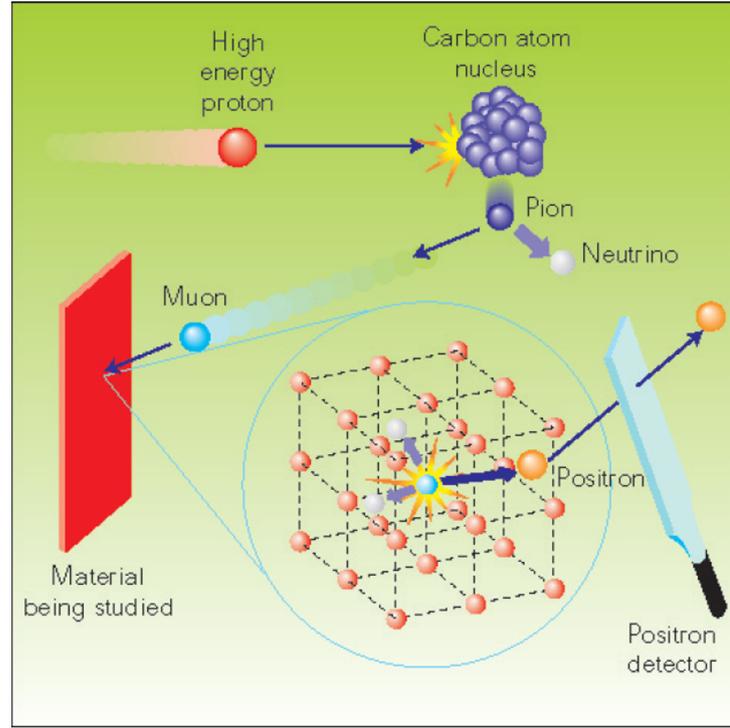


Fig. 2.22 – *Résumé du principe de création, implantation et détection de la spectroscopie de muons.* [137]

Le muon est alors implanté dans le matériau à étudier. Le muon étant chargé positivement, il se localise en un site cristallographique interstitiel. De là, il ressent le champ magnétique local \mathbf{B}_{loc} qui résulte de la somme du champ dipolaire créé par les moments magnétiques des atomes situés autour du muon et du champ de contact qui provient de la polarisation des électrons de conduction au site du muon. Les champs magnétiques extérieur, de Lorentz et démagnétisant contribuent également à \mathbf{B}_{loc} . Le moment magnétique du muon précesse autour de \mathbf{B}_{loc} et évolue selon l'équation de Larmor :

$$\frac{d\mathbf{S}_\mu}{dt} = \gamma_\mu \mathbf{S}_\mu(t) \times \mathbf{B}_{loc}$$

avec $\gamma_\mu = 851.6 \text{ Mrad.s}^{-1}.\text{T}^{-1}$ le rapport gyromagnétique du muon. Le champ magnétique étant supposé constant, la fréquence de précession du muon est $\omega_\mu = \gamma_\mu B_{loc}$. Le muon a un temps de demi-vie $\tau_\mu = 2.2 \text{ }\mu\text{s}$ et se désintègre en émettant un positon préférentiellement dans la direction de son moment magnétique. La mesure μSR consiste alors en la détection des positons en fonction du temps. Dans le cas des expériences à géométrie transverse (champ magnétique orthogonal au moment magnétique des muons incidents), le signal mesuré par des détecteurs diamétralement opposés est $N_\pm(t) = N_0 \exp(-t/\tau_\mu)(1 \pm a_0 P_X(t))$, où $a_0 P_X(t)$ est appelée l'asymétrie. Dans le cas d'une phase paramagnétique, la fonction de polarisation $P_X(t)$ peut en général être ajustée par une sinusoïde dont l'amplitude décroît de façon exponentielle :

$$P_X(t) = \exp(-\lambda t) \cos(\gamma_\mu B_{loc} t + \phi) \quad (2.1)$$

avec λ le coefficient d'atténuation et ϕ la phase, dépendant du placement du détecteur. Dans ce cas, c'est la dynamique des spins électroniques qui domine la relaxation des spins des muons. La figure 2.23 présente un exemple typique de spectre μ SR en géométrie transverse (spectre mesuré sur une couche mince de FeGe B20 à 290 K et sous application d'un champ magnétique hors plan de 150 mT), ainsi que son ajustement par l'équation 2.1. Dans la phase magnétique, la fonction de polarisation est nettement moins triviale. Dans ce cas, même si la dynamique de spins influence la mesure, c'est la distribution statique de champs qui est principalement sondée. Celle-ci peut être particulièrement complexe, chaque muon ressentant un \mathbf{B}_{loc} différent en fonction de son emplacement dans l'échantillon et dans le cristal.

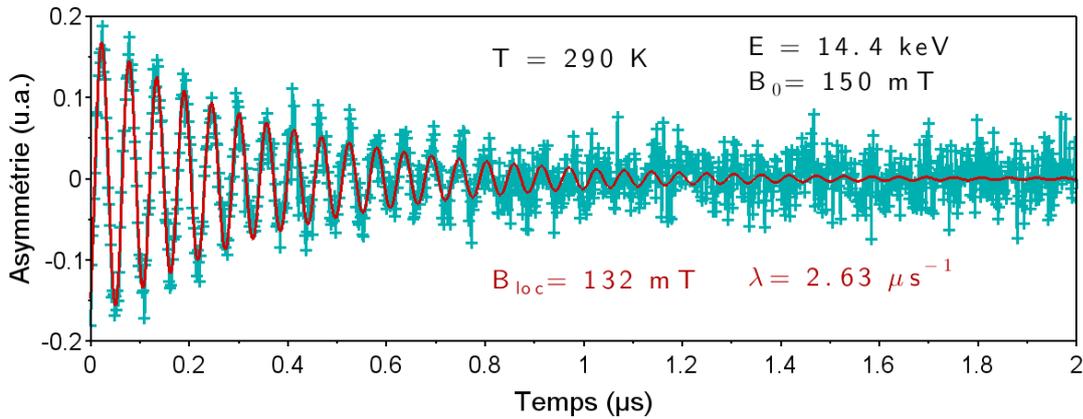


Fig. 2.23 – Exemple d'un spectre μ SR en géométrie transverse et son ajustement. En noir sont reportées les conditions de mesure et en rouge les paramètres extraits de l'ajustement.

Ainsi, les mesures μ SR permettent de sonder localement le système étudié, à l'échelle atomique. Cette technique n'est sensible qu'aux effets magnétiques et permet donc de s'affranchir des effets électriques (contrairement au MET par exemple). Il est alors possible de caractériser une distribution de moments magnétiques atomiques, et donc en théorie de discriminer les phases hélicoïdale, conique et de skyrmions dans des matériaux héli-magnétiques tels que le FeGe. Des mesures μ SR ont déjà été réalisées avec succès sur des cristaux [138, 139] et des couches minces [140] de MnSi B20. De plus, cette technique est non destructive, et, contrairement à la spectroscopie Mössbauer, applicable à tous les matériaux. La polarisation totale des muons incidents obtenue en l'absence de champ magnétique extérieur est également un avantage considérable, en comparaison par exemple à la spectroscopie de résonance magnétique nucléaire qui nécessite d'appliquer un champ magnétique au niveau de l'échantillon. Cette technique offre également une très grande sensibilité. En effet, il est possible de détecter une rotation du spin du muon de $1/5$ rad en $10 \mu\text{s}$, conduisant à une sensibilité de $B_{loc} = \frac{\omega_{\mu}}{\gamma_{\mu}} = \frac{1}{851.6 \cdot 10^6} \frac{1/5}{10 \cdot 10^{-6}} \approx 20 \mu\text{T}$.

Il est possible d'autre part de contrôler la profondeur d'implantation des muons par ajustement de l'énergie des muons incidents. La profondeur d'implantation pour un muon ayant une énergie de 4 MeV est typiquement de 0.1 - 1 mm en fonction du matériau étudié. Elle peut être réduite jusqu'à quelques nm pour une énergie inférieure à 1 keV. Cependant, la procédure de ralentissement des muons nécessite un appareillage particulier

et réduit considérablement le nombre de muons incidents. Les mesures μ SR à basse énergie nécessitent donc un temps de comptage beaucoup plus long. L'institut Paul Scherrer en Suisse est l'unique centre de muons doté d'un tel appareillage [141]. La figure 2.24 présente les profils d'implantation des muons dans une couche mince de FeGe en fonction de l'énergie des muons. Ces profils sont obtenus par simulation Monte Carlo *, en considérant une couche de protection d'aluminium oxydé dont l'épaisseur a précédemment été évaluée à 8 nm par des mesures de réflectivité de rayons X. De ces simulations il est possible d'extraire empiriquement une dépendance linéaire de la profondeur d'implantation moyenne D avec l'énergie E des muons suivant la fonction : D (nm) = $4 \times E$ (keV) - 5 (où $D = 0$ nm correspond à l'interface entre le FeGe et la couche de protection).

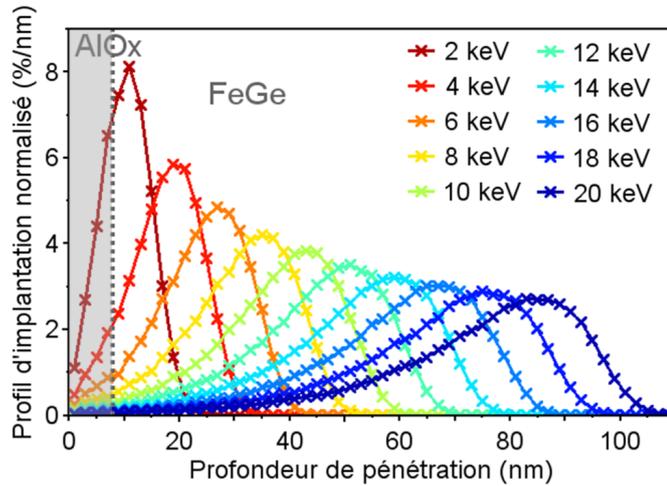


Fig. 2.24 – Profils d'implantation des muons dans la couche mince de FeGe en fonction de la profondeur pour différentes énergies des muons incidents. Une épaisseur de 8 nm d'alumine (zone grisée) est prise en compte à la surface de l'échantillon.

Des mesures μ SR à basse énergie permettent alors de caractériser localement l'arrangement microscopique des moments magnétiques, et ainsi d'observer des phénomènes de surface et d'interface. En particulier, dans le cas des matériaux héli magnétiques, un nouvel état magnétique de "bobbers" a été prédit [142]. Alors que les skyrmions sont étendus sur toute l'épaisseur, un "bobber" est localisé à la surface de l'échantillon † (voir figure 2.25). Ces nouvelles textures magnétiques ont été observées expérimentalement très récemment dans des monocristaux de FeGe B20 par des mesures d'holographie en MET-L [143] et dans des couches minces épitaxiées de FeGe B20 par des mesures de susceptibilité magnétique [144]. Cette texture magnétique métastable de la phase conique, présente à la surface de l'échantillon, devrait être observable par des mesures μ SR à basse énergie. De telles mesures ont alors été menées en champ transverse à l'institut Paul Scherrer en Suisse sur des couches minces de FeGe B20 de 150 nm d'épaisseur afin d'optimiser le signal et de faciliter l'observation d'une éventuelle dépendance en fonction de la profondeur d'implantation.

*. Simulations réalisées avec le logiciel TrimSP à l'institut Paul Scherrer

†. La traduction littérale de "bobber" est un flotteur de pêche

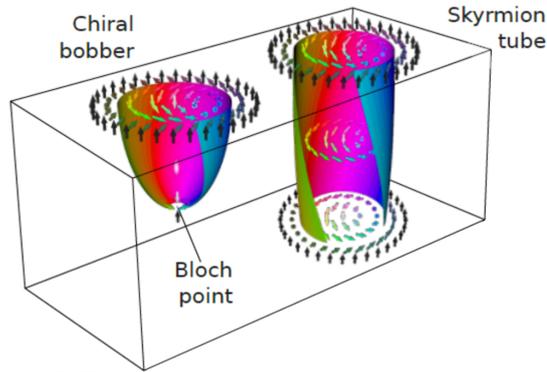


Fig. 2.25 – Schéma représentatif d'un "bobber" chiral et d'un skyrmion dans un matériau héli magnétique [143].

2) μ SR sur couches minces de FeGe

Dans un premier temps des mesures μ SR en température ont été réalisées. L'énergie des muons est fixée à 14.4 keV, correspondant à une profondeur d'implantation moyenne de 53 nm dans la couche mince de FeGe, et un champ magnétique hors plan $B_0 = 150$ mT est appliqué. D'après les mesures d'EHT présentées précédemment, un tel champ appliqué hors plan permet l'apparition de la phase de skyrmions. La figure 2.26 présente les transformées de Fourier (TF) des spectres μ SR pour des températures variant de 260 K à 320 K (la température de transition magnétique du FeGe B20 volumique étant 278 K). À des températures plus faibles l'atténuation du signal mesuré est telle que les oscillations ne sont plus perceptibles. Les spectres de Fourier présentent très distinctement deux pics, ajustés ici par des lorentziennes, centrées en B_{loc} . Le graphe en encart représente la dépendance en température du rapport $(B_{loc} - B_0)/B_0$ pour les deux pics identifiés à chaque température. On remarque une décroissance des champs magnétiques locaux

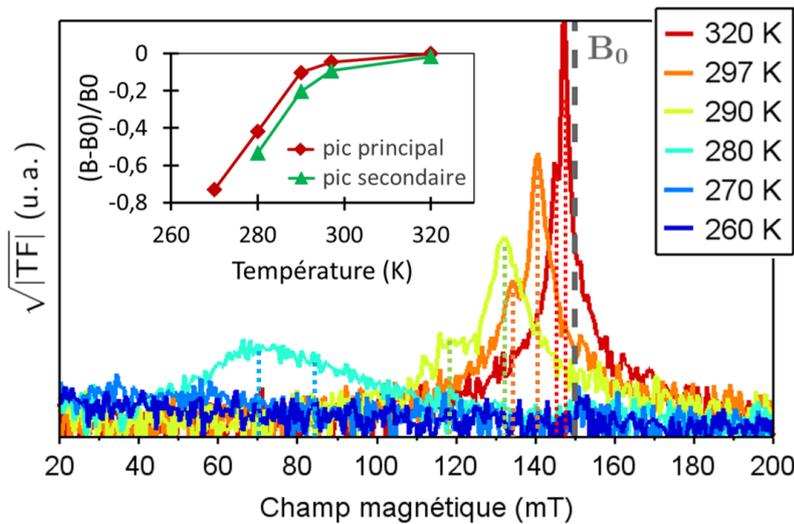


Fig. 2.26 – TF des spectres μ SR réalisés à énergie constante (14.4 keV) et à différentes températures, et dépendance en température du rapport $(B_{loc} - B_0)/B_0$ des deux pics identifiés.

avec l'abaissement de la température. Une telle dépendance a déjà été observée dans des couches minces de FeGe B20 (40 nm sur MgO (100), même champ) [75]. Cette dépendance avec la température a été attribuée au décalage diamagnétique qui augmente lorsque la température diminue. Cependant, dans notre cas, la décroissance avec la température est beaucoup plus forte (à 270 K, $B_{loc} = 40$ mT contre 140 mT dans [75]). Cette différence dans les mesures μ SR pourrait être liée au protocole de croissance des couches minces de FeGe B20. En effet, la croissance de FeGe B20 sur MgO (100) conduit à une forte contrainte épitaxiale (désaccord de maille de 12 %), et une direction de croissance selon $\langle 100 \rangle$ (contre $\langle 111 \rangle$ dans notre cas). En outre, l'apparition d'un deuxième pic dans les TF à toutes les températures est remarquable. Cette forme non triviale de la distribution de champs pourrait être le témoin d'une inhomogénéité structurale ou magnétique. Dans notre cas, où les deux pics semblent suivre la même tendance en température, l'hypothèse de la présence de corrélations magnétiques, même au-delà de la température de transition de la couche mince de FeGe évaluée précédemment à 280 K, est la plus probable. D'autre part, la TF du spectre μ SR obtenu à 280 K et 150 mT ressemble fortement à celle des spectres μ SR mesurés par Pierre Dalmas de Réotier sur des monocristaux de MnSi [145] à 28.5 K et à des champs magnétiques variant de 200 à 230 mT (spectres encadrés par l'accolade sur la figure 2.27a). Dans ces deux cas, la distribution en champs est asymétrique avec une augmentation rapide en dessous du maximum et une décroissance beaucoup plus lente au-dessus. Cette zone en champ et en température correspondrait à la phase intermédiaire [146] située entre la phase paramagnétique et la phase de skyrmions, et s'étendant légèrement au-delà de la température de transition magnétique du MnSi (voir figure 2.27b). Il est alors possible que nous observions un début d'organisation magnétique correspondant à cette phase intermédiaire dans les couches minces de FeGe à 280 K et au-delà.

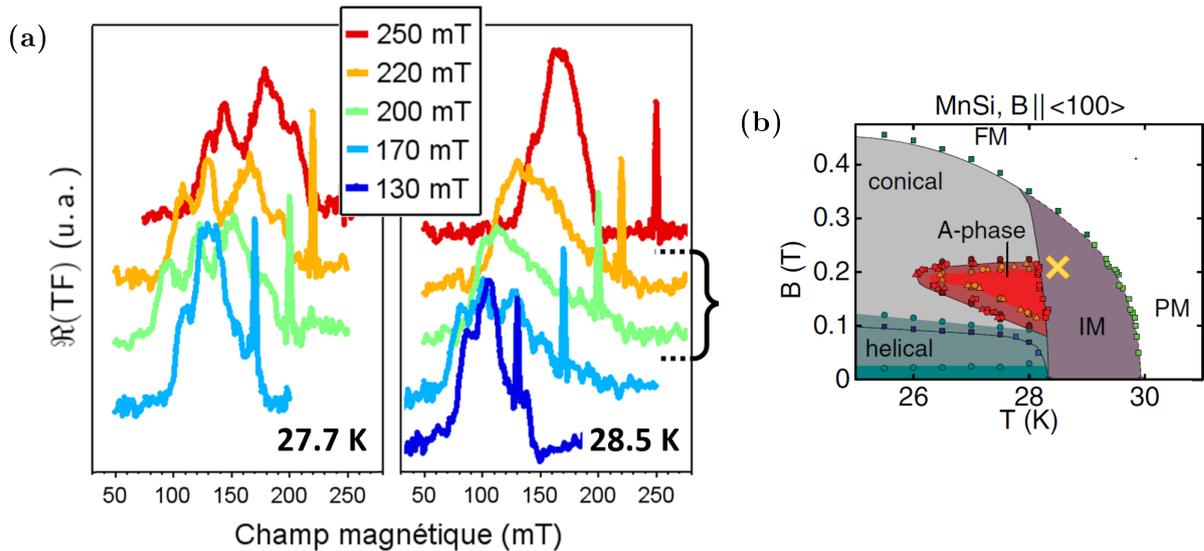


Fig. 2.27 – *a)* TF des spectres μ SR mesurés sur un monocristal de MnSi à 27.7 K et 28.5 K et à différents champs magnétiques appliqués le long de la direction $\langle 100 \rangle$ [145]. *b)* Diagramme de phase du MnSi [146]. La zone notée IM est la zone intermédiaire. La croix jaune est positionnée à 28.5 K et 210 mT.

D'autre part, le profil d'implantation des muons étant relativement large (~ 25 nm de largeur à mi-hauteur à 14 keV), les données mesurées sont moyennées sur plusieurs profondeurs. Une évolution de la température de transition avec la profondeur sondée pourrait être à considérer. Cela pourrait expliquer le début d'arrangement magnétique à 300 K. Des mesures μ SR ont alors été réalisées à 280 K à différentes énergies de muons incidents afin de caractériser les distributions magnétiques en fonction de la profondeur. La figure 2.28 présente les intensités spectrales des spectres μ SR mesurés à 280 K et à 150 mT, avec une énergie de muons incidents variant de 2.4 à 19 keV, c'est-à-dire une profondeur d'implantation moyenne variant entre 4.6 et 71 nm (rappelons que la couche mince de FeGe étudiée a une épaisseur de 150 nm). Une première analyse de ces spectres mène à l'observation d'un poids notable autour de 150 mT qui diminue avec l'augmentation de l'énergie des muons incidents. Les profils d'implantation simulés de la figure 2.24 montrent qu'à basse énergie une partie non négligeable des muons s'arrête dans la couche d'alumine. La proportion de muons s'arrêtant dans la couche de protection et le rapport des aires du spectre μ SR évoluent de la même façon lorsque l'énergie des muons incidents augmente. Il semblerait alors que les muons implantés dans la couche de protection d'alumine, non magnétique, soient responsables de cette contribution à la distribution de champs autour de 150 mT. En dehors de cette contribution autour de 150 mT, on remarque également un déplacement du pic asymétrique situé aux alentours de 70 mT. En effet, le champ magnétique local moyen augmente de près de 10 mT lorsque la profondeur d'implantation du muon augmente. Cette observation est la preuve d'une évolution de la distribution magnétique en fonction de la profondeur.

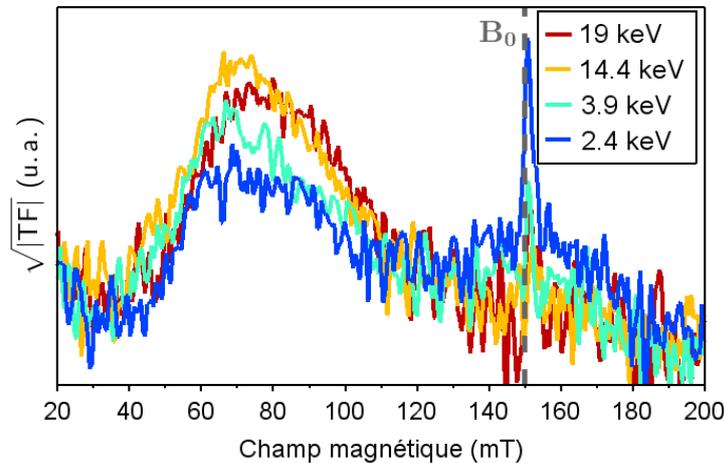


Fig. 2.28 – *TF des spectres μ SR réalisés à 280 K et à différentes énergies.*

Ainsi, l'étude de couches minces nécessitant l'utilisation de muons de basse énergie, les temps de comptage sont très longs et les signaux s'atténuent très fortement en deçà de 260 K. Deux tendances ont tout de même pu être observées par ces mesures μ SR à basse énergie. La première est la diminution du champ local ressenti par les muons avec l'abaissement de la température, attribuée au décalage diamagnétique. De plus, la forme non banale de la distribution de champs magnétiques est la signature de corrélations magnétiques qu'il reste à identifier. La deuxième tendance est l'augmentation du champ magnétique local avec la profondeur d'implantation du muon, témoin d'une évolution de l'arrangement des moments magnétiques avec la profondeur.

Des mesures μ SR à haute énergie sur des échantillons volumiques de FeGe B20 sont prévues par Pierre Dalmas de Réotier. Cela permettrait d'établir un modèle décrivant la position d'implantation des muons dans la maille cristalline et l'orientation précise des moments magnétiques des hélices/cônes magnétiques, comme réalisé précédemment pour des cristaux de MnSi B20 [138, 139]. Les éventuelles futures mesures μ SR à basse énergie sur des couches minces pourront alors être réalisées plus rapidement et plus efficacement. Un projet d'étude est l'observation de l'évolution de l'organisation des moments magnétiques en fonction des épaisseurs de couches minces. Dans cette optique, des échantillons de 30, 70 et 150 nm (à comparer à la période des hélices magnétiques qui est de 70 nm) de FeGe B20 sont déjà élaborés.

D. Conclusion et perspectives pour les couches minces de FeGe

Les mesures de magnétométrie réalisées sur les couches minces de FeGe ont permis d'extraire un moment magnétique de $1 \mu_B/\text{Fe}$. Cette valeur attendue pour un monocristal de FeGe B20 indique une grande pureté de nos couches minces de FeGe. L'homogénéité de la couche a également été confirmée par la finesse des pics Mössbauer. De plus, la nature de la fine couche de Fe-Si formée par la diffusion du Fe dans le substrat avant le dépôt de FeGe a été identifiée comme l'alliage FeSi B20 par les mesures de spectroscopie Mössbauer. D'autre part, des mesures de magnéto-transport ont été menées sur une large plage de température. La résistivité d'effet Hall topologique a ainsi été évaluée à $0.35 \mu\Omega\cdot\text{cm}$, maximale à 245 K et sous 150 mT. Cette valeur de résistivité est du même ordre de grandeur que celles reportées dans la littérature [74, 99, 76], et est le témoin de la présence de skyrmions dans nos couches minces de FeGe (zone rose dans la figure 2.29). Les mesures de spectroscopie Mössbauer ont confirmé à nouveau la présence d'une transition magnétique à 280 K (trait rouge dégradé sur la figure 2.29). En outre, la direction de propagation des hélices a été estimée. En supposant que la texture magnétique du système est bien un ensemble d'hélices magnétiques, elles se propageraient le long d'un axe situé à 20° de la direction $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20 (normale au plan de la couche). Cette observation pourrait également traduire l'inclinaison des plans de rotation des spins qui seraient non orthogonaux à la direction de propagation des hélices magnétiques attendue le long de la direction $\langle 111 \rangle$. Une telle organisation non conventionnelle des moments magnétiques a déjà été observée dans la phase conique du MnSi B20 volumique [139]. Enfin, des mesures μ SR ont également été menées sur des couches minces de FeGe B20. Les spectres observés montrent deux pics, indiquant *a priori* la présence d'un ordre magnétique même à 320 K. De plus, les spectres mesurés à 280 K semblent correspondre à la zone dite "intermédiaire" située légèrement au-delà de la température de transition (rond vert sur la figure 2.29). Cependant, cette étude en est à un stade préliminaire, et les corrélations magnétiques détectées ne sont pas encore identifiées.

L'ensemble de ces mesures a permis de confirmer le potentiel des couches minces de FeGe B20 déposées par pulvérisation cathodique pour l'observation et la manipulation de skyrmions. Il existe désormais plusieurs pistes d'approfondissement. L'une d'elle est l'étude de la dépendance de l'effet Hall topologique en fonction de la taille des croix de Hall. Des mesures de spectroscopie Mössbauer sont également prévues afin de compléter

le diagramme de phase des couches minces de FeGe B20 et de préciser la direction de propagation des hélices et cônes magnétiques. Enfin, quelle que soit la technique de caractérisation, une étude de la dépendance des phénomènes magnétiques en fonction de l'épaisseur de la couche mince (à comparer avec la période des hélices magnétiques) est à envisager.

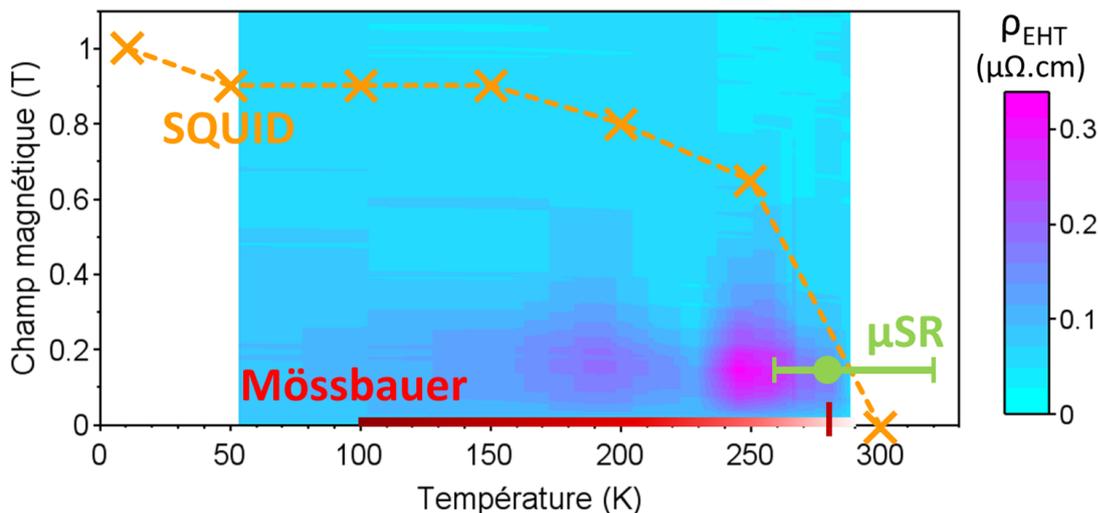


Fig. 2.29 — Résumé des différentes expériences réalisées sur les couches minces de FeGe et leur emplacement sur le diagramme de phase en température et champ magnétique. Le fond coloré représente l'amplitude de l'effet Hall topologique. En orange est représenté le champ magnétique de saturation déterminé par les mesures SQUID (le trait pointillé est un guide pour les yeux). En rouge est représentée l'amplitude du champ hyperfin mesuré par spectroscopie Mössbauer, avec une température de transition magnétique identifiée à 280 K. La zone de mesure de spectroscopie μ SR est tracée en vert, le rond représentant la mesure à 280 K semblant appartenir à la zone "intermédiaire".

IV Étude des propriétés magnétiques des multicouches

[Au/Co/Pd]_n

Intéressons-nous désormais aux systèmes magnétiques en multicouches. Dans le chapitre précédent nous avons montré le potentiel des multicouches [Au/Co/Pd]_n pour des applications à la spintronique. En effet, des calculs *ab initio* prévoient des coefficients de DMI de signes opposés pour les couples Co/Pd et Co/Au [110]. La contribution totale attendue de la DMI du système [Au/Co/Pd]_n est donc importante (1.25 mJ/m²). D'autre part, les études magnétiques préliminaires réalisées sur les multicouches [Au(10 Å)/Co(6-8 Å)/Pd(10 Å)]₁₀ ont révélé une anisotropie perpendiculaire et une texture magnétique en longs domaines entrelacés mêlés de bulles de petite taille (< 150 nm). Ces mesures ont alors permis d'établir le fort potentiel de ce système, et de l'optimiser, pour des applications à la spintronique. Associé à une DMI importante et à une couche tampon à fort effet Hall de spin, ce système offrirait l'opportunité d'un déplacement de parois magnétiques rapide et nécessitant des courants d'intensité plus faible que pour des systèmes sans DMI.

A. Effets de taille sur la texture magnétique des multicouches

[Au/Co/Pd]_n

Dans cette partie nous étudions le renversement d'aimantation et les propriétés de magnéto-transport d'une multicouche [Au (10 Å)/Co (6.6 Å)/Pd (10 Å)]₁₀ en couche mince et nanostructurée. La magnétorésistance et l'effet Hall extraordinaire du matériau ont été caractérisés sur des nanostructures lithographiées dans la multicouche. Des mesures d'imagerie magnétique ont été réalisées en parallèle afin de préciser le fonctionnement du renversement d'aimantation. La dépendance des paramètres de magnéto-transport ainsi que de la texture magnétique avec la taille des nanofils est exposée ici.

1) Détermination des paramètres magnétiques

Les paramètres magnétiques des multicouches Ti(5 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6.6 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) ont été déterminés par magnétométrie à SQUID. Les cycles d'aimantation dans le plan et hors plan mesurés à température ambiante (figure 2.30a) permettent d'extraire une aimantation à saturation $M_S = 1400 \pm 100$ kA/m et une anisotropie perpendiculaire effective $K_{eff} = 150 \pm 10$ kJ/m³. Ces valeurs sont normalisées par l'épaisseur totale de Co dans les multicouches. Ces valeurs d'aimantation et d'anisotropie sont comparables à celles des multicouches [Co/Pt]_n [147] et [Co/Ni]_n [148], deux systèmes réputés pour leur fort potentiel d'applications dans le domaine de la spintronique. Le cycle d'aimantation hors plan affiche également une rémanence de 30 % et un champ coercitif $B_C = 14.5 \pm 0.2$ mT comparable à celui des multicouches [Co/Pt]_n à forte anisotropie perpendiculaire [149], laissant espérer la possibilité d'observer des mouvements de parois par l'application d'un courant à champ nul.

D'autre part, des images de microscopie à force magnétique (MFM) ont été réalisées sur des échantillons sans histoire magnétique (immédiatement après le dépôt), montrant des domaines magnétiques à aimantation perpendiculaire entrelacés (figure 2.30b). La

largeur de ces domaines magnétiques est de 135 ± 5 nm. De ces paramètres magnétiques, et grâce au modèle de Kaplan et Gehring [150] corrigé par Gehanno *et al.* [151], on peut extraire une énergie de paroi de domaine $\sigma_{DW} = 2.6 \pm 0.2$ mJ/m². L'énergie d'une paroi de Bloch est classiquement $\sigma_{Bloch} = 4\sqrt{AK_{eff}}$, avec A la constante de rigidité d'échange. En considérant $A = 5 - 15$ pJ/m (ordre de grandeur des valeurs reportées dans la littérature pour le Co), on trouve une énergie de paroi $\sigma_{Bloch} = 3.5 - 6$ mJ/m². Cette valeur d'énergie de paroi, plus grande que la valeur extraite à partir de la taille des domaines magnétiques à l'équilibre, semble indiquer la présence de DMI avec une constante D_{eff} estimée à $(4\sqrt{AK_{eff}} - \sigma_{DW})/\pi = 0.7$ mJ/m². Cependant, le modèle de Kaplan et Gehring s'appliquant au cas d'une couche magnétique continue, cette analyse est à considérer avec précaution.

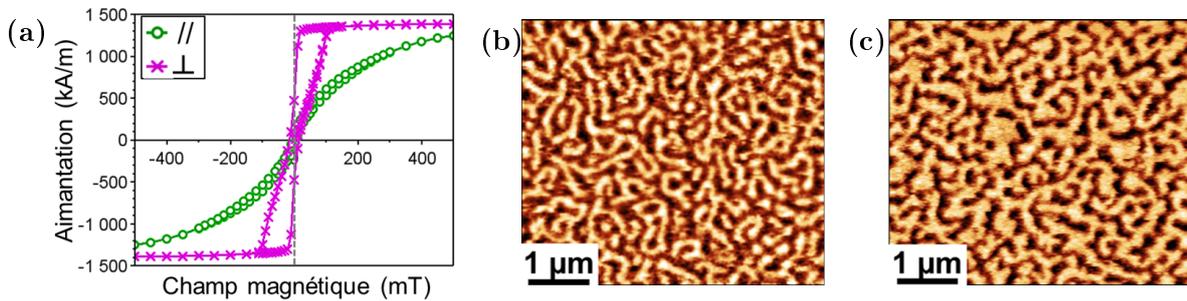


Fig. 2.30 – *a)* Cycles d'hystérésis dans le plan et hors plan mesurés au magnétomètre à SQUID à température ambiante. Images MFM *b)* en sortie de dépôt et *c)* à rémanence après saturation d'une multicouche $Ti(5 \text{ \AA})/Au(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(6.6 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$.

La figure 2.30c présente la configuration magnétique observée par MFM à rémanence après saturation. Les domaines renversés apparaissent en noir. Les parois de domaines sont moins lisses que dans l'état magnétique brut. Il y a en effet pendant la croissance des domaines magnétiques une compétition entre le désordre (piégeage des parois de domaine sur des défauts structuraux) qui tend à rendre les parois rugueuses, l'énergie de paroi de domaine qui tend à les lisser, et les effets de champ démagnétisant qui tentent d'imposer la taille des domaines magnétiques à l'équilibre [152]. La largeur des domaines magnétiques après le retour à la rémanence reste proche de la taille à l'équilibre (135 nm). Cela signifie que la structure des domaines magnétiques est principalement gouvernée par les effets de champ démagnétisant.

Ainsi, les mesures de magnétométrie à SQUID associées à l'imagerie magnétique par MFM ont permis de déterminer les paramètres magnétiques du système $Ti(5 \text{ \AA})/Au(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(6.6 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$.

2) Propriétés électriques des multicouches $[Au/Co/Pd]_n$

Afin de confirmer le potentiel des multicouches $[Au/Co/Pd]_{10}$ pour des applications à la spintronique, des mesures de magnétorésistance et d'effet Hall ont été menées. Des doubles croix de différentes largeurs (100, 200 et 500 nm) ont alors été réalisées par Laurent Vila, par lithographie électronique d'une résine négative, suivie d'une gravure ionique.

L'image 2.31 présente le patron de gravure avec le schéma de connexion de mesures, ainsi qu'une image par microscopie électronique à balayage (MEB) d'une croix de 500 nm. Cette image MEB, réalisée sur un échantillon incliné, montre l'excellente qualité de la gravure par l'absence de bourrelet sur les bords des nanofils. Les résistances longitudinale et de Hall ont été mesurées simultanément à l'aide d'un banc de mesure de transport à détection synchrone avec un courant alternatif de 100 μA à 107 Hz et sous application d'un champ magnétique perpendiculaire variant de -1.5 à 1.5 T.

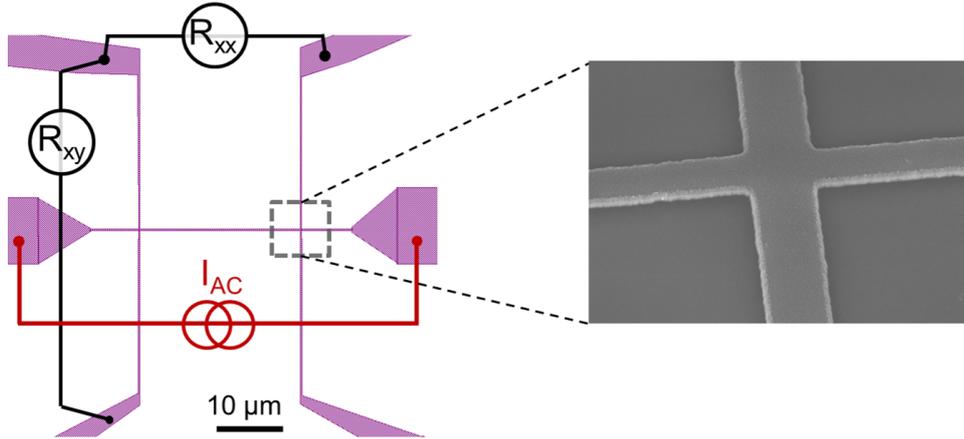


Fig. 2.31 – Schéma d'une double croix de Hall lithographiée et du montage électrique, et image MEB d'une croix de 500 nm (échantillon incliné).

À température ambiante, le système $\text{Ti}(5 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6.6 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ présente une résistivité de 24 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$. Cette résistivité est celle du système complet car il est extrêmement difficile de mesurer précisément la résistivité des couches tampon et de protection indépendamment. En effet, pour des couches très minces, c'est-à-dire d'épaisseur très inférieure au libre parcours moyen des électrons de conduction du matériau considéré (14 nm pour l'Au), l'épaisseur de la couche mince ainsi que la nature et la qualité des interfaces jouent un rôle prépondérant sur la résistivité. Le modèle de Fuchs-Sondheimer [153] permet d'évaluer la résistivité d'un film mince en fonction de son épaisseur t , sa rugosité h , et du libre parcours moyen de l'électron de conduction l (on prendra $l = 14 \text{ nm}$) :

$$\frac{\rho_{volume}}{\rho_{film}} = 1 - \frac{3}{2\kappa} \int_0^1 (u - u^3)(1 - p) \frac{1 - e^{-\kappa/u}}{1 - pe^{-\kappa/u}} du$$

avec $\kappa = t/l$ et $\rho_{volume} = 2.2 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ la résistivité de l'Au volumique. p est un paramètre lié à la rugosité h suivant $p(u) = \exp[-(4\pi h/\lambda_F)^2 u^2]$, où λ_F est la longueur d'onde de Fermi ($\sim 0.5 \text{ nm}$ pour l'Au). La figure 2.32a présente la variation de résistivité à température ambiante de l'Au en fonction de l'épaisseur déposée pour trois rugosités différentes selon le modèle de Fuchs-Sondheimer. On comprend alors que la résistivité d'une couche mince de 5 nm d'Au seule différera de la résistivité de cette même couche mince sous une multicouche $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$. Les valeurs de résistivité présentées par la suite seront donc celles de l'échantillon complet.

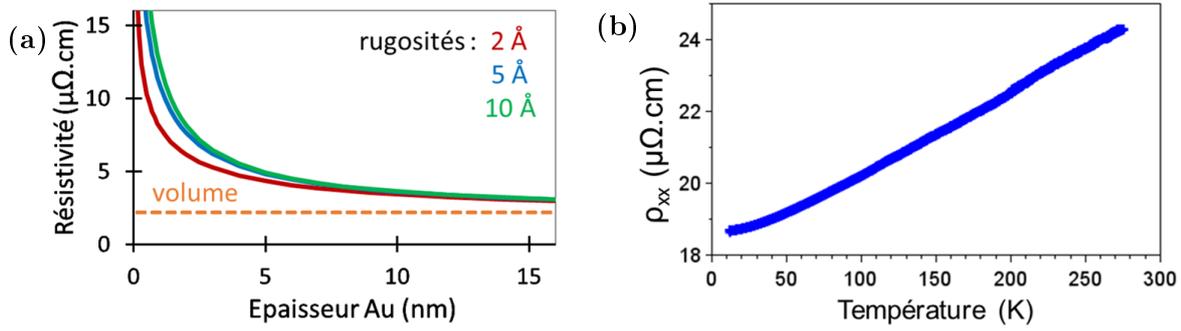


Fig. 2.32 – *a)* Dépendance en épaisseur de la résistivité de l’Au selon le modèle de Fuchs-Sondheimer [153], pour des rugosités de 2, 5 et 10 Å. *b)* Dépendance en température de la résistivité longitudinale mesurée sur une double croix de 500 nm d’une multicouche $\text{Ti}(5 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6.6 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$.

La dépendance en température de la résistivité longitudinale a été mesurée (figure 2.32b), et montre une RRR (pour *residual-resistance ratio*) $\rho_{xx}(300\text{K})/\rho_{xx}(10\text{K}) = 1.3$. Cette valeur peut paraître faible (habituellement proche de 30 pour des couches métalliques épitaxiées épaisses), mais dans le cas où les épaisseurs sont nettement inférieures au libre parcours moyen des électrons de conduction, les effets d’interfaces dominent, diminuant considérablement la RRR [154]. Considérant l’importance des effets d’interface, les valeurs de résistivité à température ambiante et de RRR mesurées sur les couches minces de $\text{Ti}(5 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6.6 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ attestent à nouveau* de la bonne qualité des interfaces de notre système.

3) Effets de taille sur la texture magnétique et le renversement d’aimantation

La magnétorésistance longitudinale (MR) et la résistance de Hall ont été mesurées dans le film mince et dans les doubles croix de Hall de 100, 200 et 500 nm de large. Les figures 2.33 a) et b) présentent la variation des propriétés de magnéto-transport avec la taille des fils. La mesure de l’effet Hall extraordinaire (EHE) sur couche mince est cohérente avec le cycle d’hystérésis hors plan mesuré au SQUID (figure 2.30a). On peut extraire des mesures de Hall un angle d’EHE $\theta_{EHE} = \rho_{xy}^E/\rho_{xx} = 0.44 \%$ à température ambiante et à 10 K, proche de 1.3 % relevé pour des multicouches $[\text{Co}/\text{Pt}]_n$ avec des épaisseurs similaires [149]. Cette valeur d’angle d’EHE est en réalité une limite inférieure puisqu’une partie du courant est court-circuitée par les 5 nm d’Au de la couche tampon. Les courbes de MR présentent à haut champ une décroissance linéaire non saturée de la résistance. Cette décroissance peut être attribuée à la MR de magnons (MMR), c’est-à-dire à la contribution des magnons à la résistivité [127]. À température ambiante, $d\rho_{xx}/dB = -0.04 \mu\Omega\cdot\text{cm}/\text{T}$ ou $0.2 \%/T$, comparable aux valeurs reportées pour les alliages NiFe [155] et FePt [128]. Cette valeur élevée indique que la MMR peut être utilisée pour détecter efficacement des mouvements de parois dans ce système. Les courbes de MR montrent également un comportement hystérétique à bas champ, avec une contribution linéaire en champ de la résistance due à la MMR, et une éventuelle contribution supplémentaire

*. Les mesures de réflectivités présentées au chapitre précédent démontraient déjà une faible rugosité des interfaces

des magnétorésistances anisotrope (AMR) et de paroi (DWR) [125]. Le système étant à aimantation perpendiculaire, la contribution de l'AMR est faible et située au niveau des parois de domaines où les moments magnétiques sont dans le plan et donc potentiellement parallèles au courant.

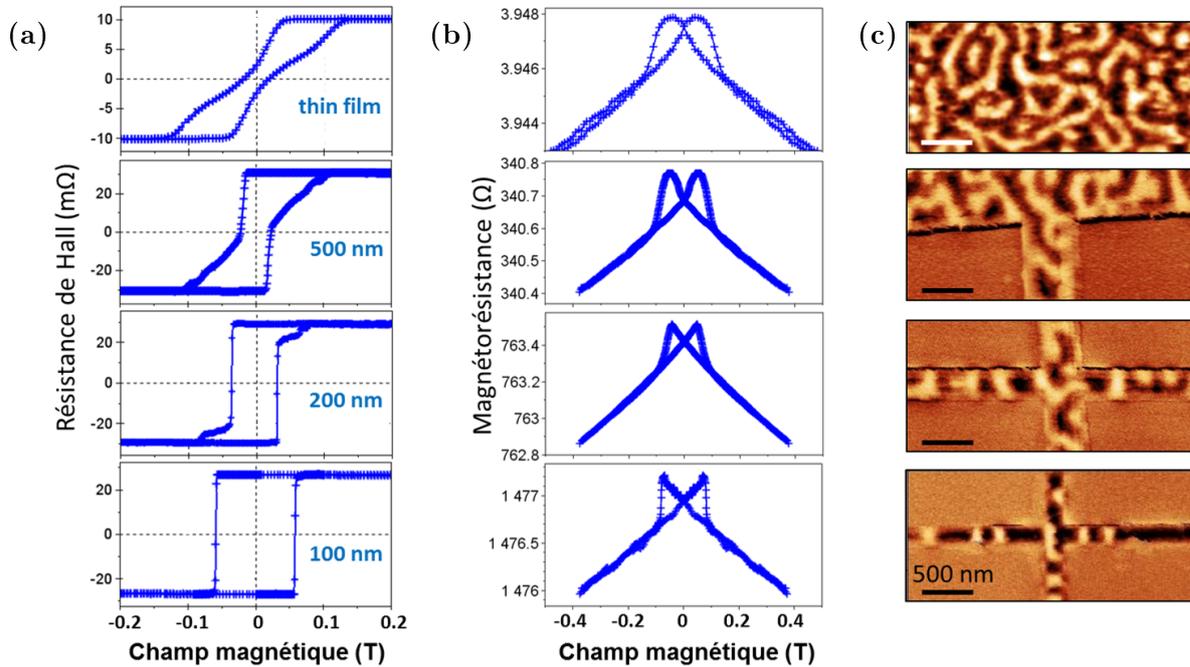


Fig. 2.33 – *a)* Mesures d'effet Hall, *b)* de magnétorésistance et *c)* images MFM as grown réalisées sur couche mince et double croix de Hall d'une multicouche $Ti(5 \text{ \AA})/Au(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(6.6 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$.

Plusieurs caractéristiques sont observées en mesurant la MR et l'EHE dans les nanofils. La largeur des fils ne modifie pas l'angle d'EHE, mais la forme du cycle de résistivité de Hall évolue de façon drastique avec la taille des croix (voir figure 2.33a). En effet, on remarque une forte augmentation de la rémanence (100 % dès 500 nm de large) et du champ coercitif, ainsi qu'une diminution du champ de saturation avec la réduction de la largeur des fils. Ces phénomènes seront expliqués plus loin en s'appuyant sur les observations réalisées par imagerie magnétique. La forme des cycles de MR change également avec la taille des fils (voir figure 2.33b). En effet, la contribution de la MMR étant proportionnelle à $\vec{M} \cdot \vec{B}$ [127], l'évolution des cycles d'aimantation visible en résistivité de Hall se manifeste aussi sur les cycles de MR, avec en particulier une forme plus abrupte des renversements dans les cycles pour les petites largeurs de fils.

La figure 2.33c présente les observations MFM réalisées sur des nanostructures de tailles différentes. Les mesures ont été conduites en sortie de dépôt, juste après la lithographie. Le système se trouve donc dans son état magnétique brut. On observe une évolution de la texture magnétique pour des largeurs de fils inférieures à 200 nm. Rappelons que la taille des domaines magnétiques à l'équilibre est de 135 nm. Dans le cas des croix de 200 nm, les parois de domaines s'alignent perpendiculairement aux bords des fils. Cela permet de minimiser la surface de paroi, et par conséquent le coût des énergies d'anisotropie et d'échange. À 100 nm (plus fin que la taille d'équilibre des domaines

magnétiques), l'état magnétique est constitué de domaines magnétiques séparés par des parois perpendiculaires au fil, c'est-à-dire dans la configuration idéale pour la réalisation d'expériences de propagation de paroi par application d'un courant. Cet effet est également observé sur la figure 2.34 dans une nanostructure consistant en un unique nanofil de largeur variable. La transition entre domaines entrelacés de façon isotrope et parois perpendiculaires au fil se produit pour une largeur comprise entre 100 et 150 nm. Quand la largeur du fil devient plus petite que la taille des domaines magnétiques à l'équilibre, la configuration labyrinthique n'est plus stable.

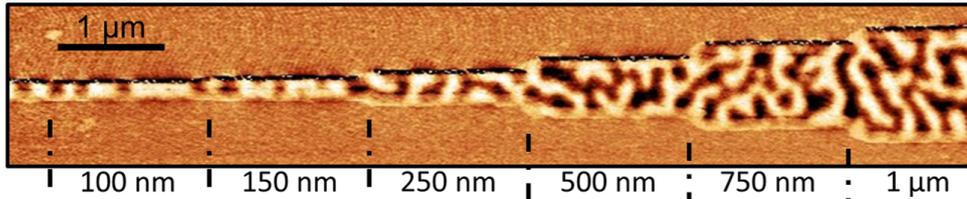


Fig. 2.34 – Image MFM as grown d'un fil à largeur variable

Revenons désormais à l'évolution des cycles de résistivité de Hall pour des nanofils étroits. Une forte décroissance du champ à saturation est observée, passant de 132 mT pour le film mince à 62 mT pour le fil large de 100 nm. Cela peut être attribué à la diminution des effets de champ démagnétisant : alors que le champ démagnétisant s'oppose à la saturation magnétique, son impact est considérablement réduit dans les fils très fins par les effets de géométrie. À l'opposé, le champ coercitif augmente dans les petits fils, de 15 mT à 56 mT. La principale cause de cette augmentation est la suppression de chemins disponibles pour la propagation des parois de domaine [156]. En effet, dans un nanofil étroit, la paroi doit traverser les défauts structuraux pour propager le domaine magnétique. Dans un fil plus large, la paroi peut suivre un chemin moins coûteux en énergie en contournant les plus gros défauts. À basse température il devient possible d'observer des sauts de Barkhausen (voir figure 2.35), c'est-à-dire le mouvement discret d'une paroi de domaine d'un centre de piégeage à un autre. Le cycle mineur réalisé dans une croix de 100 nm montre 4 sauts, indiquant une distance typique entre centres de piégeage de 20 nm.

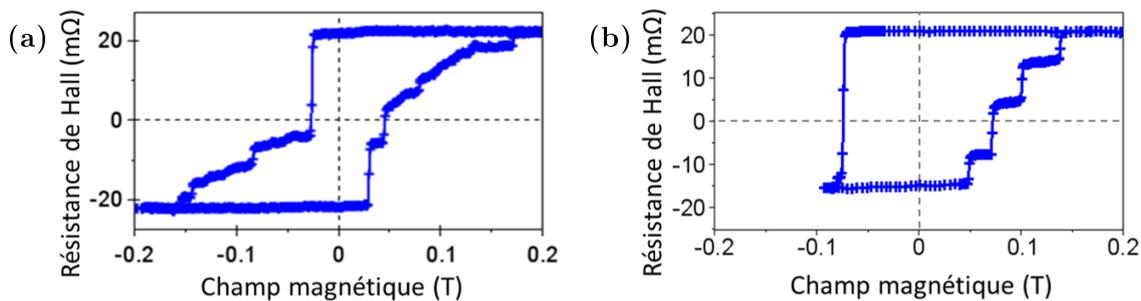


Fig. 2.35 – *a)* Cycle d'hystérésis EHE d'une croix de 200 nm à 10 K. *b)* Cycle d'hystérésis EHE mineur d'une croix de 100 nm à 10 K. Des sauts de Barkhausen sont clairement visibles dans les deux cas.

L'augmentation de la coercivité pour des fils étroits peut également être observée par MFM dans l'état rémanent, après saturation et renversement partiel des domaines magnétiques. La figure 2.36 montre la propagation d'un unique domaine magnétique (en noir) créé dans un bloc de nucléation situé à droite de l'image. Le domaine ne se propage pas jusqu'à la partie la plus fine du fil. Cet effet peut également être observé sur la figure 2.37, où l'injection et la propagation de parois sont plus difficiles dans les fils les plus fins. Un autre effet participe également à l'augmentation de la coercivité. Les centres de nucléation étant distribués aléatoirement dans le matériau, la probabilité qu'un nanofil contienne un centre de nucléation est faible. On remarque par exemple sur la figure 2.37 l'absence de nucléation pour les deux fils les plus étroits. Dans le nanofil de 500 nm, un unique domaine se propage. La largeur du fil étant plus grande que la taille des domaines magnétiques, la configuration magnétique en multidomaine peut être stabilisée par des effets de champ démagnétisant. L'augmentation de la coercivité entraîne l'augmentation de la rémanence observée dans la figure 2.33a, la paroi de domaine ayant plus de difficultés à atteindre la croix de Hall. D'autre part, dans les fils étroits, la paroi de domaine renverse l'aimantation de toute la croix lors de son passage, expliquant le renversement abrupt d'aimantation observé par effet Hall.

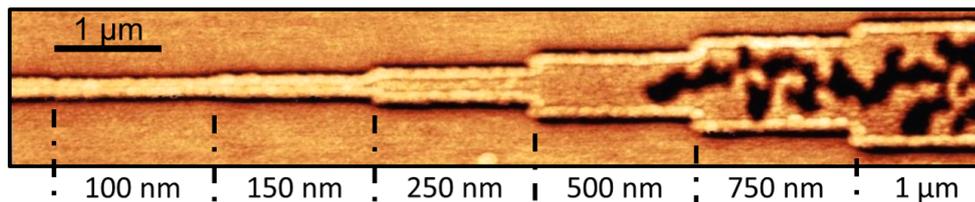


Fig. 2.36 – Image MFM à rémanence après saturation (200 mT appliqué hors plan) d'un fil à largeur variable. Un bloc de nucléation se trouve à droite de l'image.

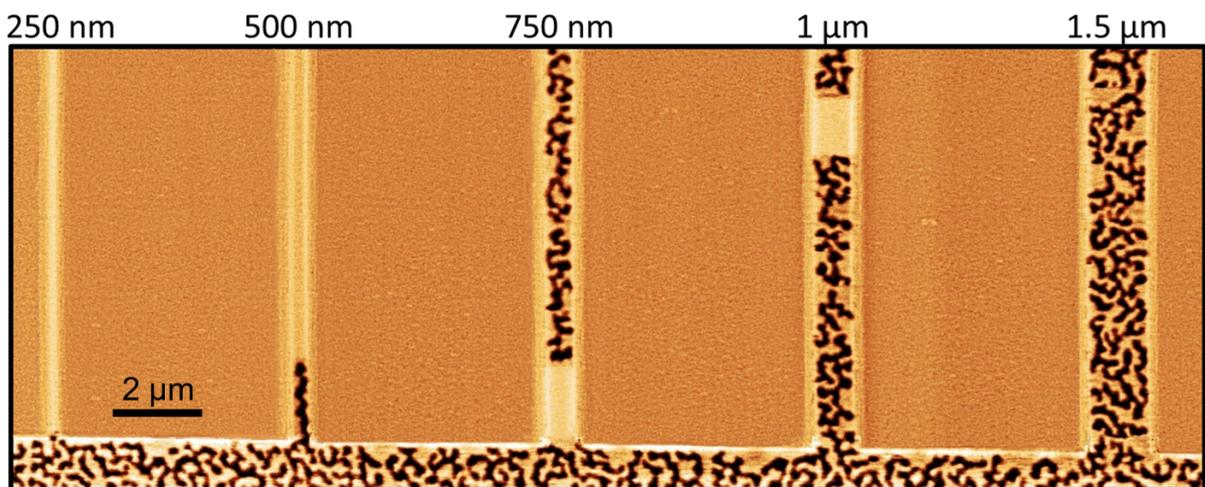


Fig. 2.37 – Image MFM à rémanence après saturation (200 mT appliqué hors plan), de nanofils de différentes largeurs (indiquées au-dessus de chacun d'eux). Un bloc de nucléation se trouve en bas de l'image.

En conclusion, les premières caractérisations magnétiques et électriques mesurées sur les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ en couches minces et nanostructurées indiquent le fort potentiel de ce nouveau système pour des expériences de déplacement de parois par courant. Des caractérisations complémentaires telles que l'évaluation du damping magnétique et de la dissipation de courant sont de toute évidence nécessaires afin de confirmer le potentiel de ce système. Il pourrait alors être une alternative intéressante aux multicouches composées de Pt. De plus, dans des nanofils de largeur inférieure à 150 nm, la configuration magnétique consiste en une série de parois de domaines parallèles, ce qui constitue la configuration idéale pour des expériences de transfert de spins. Ces expériences pourraient en outre permettre la quantification de la constante d'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya.

B. Imagerie magnétique et spectroscopie des multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$

Une première étude du système $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ par imagerie magnétique a été réalisée dans la section précédente. Cependant, elle ne nous a pas permis de conclure quant à la nature des parois de domaines magnétiques observés, ni sur la présence de DMI dans ce système. Une étude de l'évolution de la taille des bulles magnétiques en fonction du champ magnétique appliqué hors plan peut permettre d'évaluer grossièrement la force de la DMI [87]. D'autre part, la microscopie à force magnétique ne permet pas de déterminer la nature des parois de domaines dans un système à aimantation perpendiculaire, mais la microscopie électronique en transmission en mode Lorentz, qui permet de visualiser le champ magnétique induit dans le plan, offre la possibilité de distinguer les parois de Bloch des parois de Néel. Enfin, la spectroscopie Brillouin est également un outil puissant pour mesurer l'intensité de la DMI [157, 158].

1) Microscopie à force magnétique sous champ

L'évolution de la texture magnétique d'un échantillon $\text{Ti}(5 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ sous un champ magnétique appliqué hors plan a été étudiée par MFM. Des mesures MFM sous un champ variant de 0 à 200 mT ont alors été réalisées*. La figure 2.38 présente les images MFM à différents champs magnétiques. À champ nul, la texture magnétique de la multicouche est constituée de longs domaines

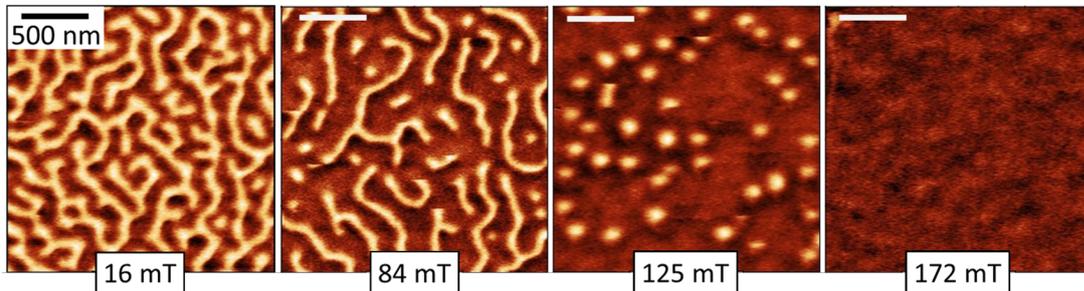


Fig. 2.38 – Images MFM d'une multicouche $\text{Ti}(5 \text{ \AA})/\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ réalisées sous champ magnétique hors plan. Les 4 images sont à la même échelle.

*. Images réalisées à l'Institut Néel de Grenoble avec Olivier Fruchart

larges d'environ 100 nm auxquels sont mêlées quelques bulles magnétiques. Lorsque le champ magnétique augmente, le domaine dont l'aimantation est parallèle à la direction du champ (zone sombre) s'étend, et les domaines magnétiques antiparallèles (clairs) se raccourcissent, jusqu'à former uniquement des bulles magnétiques à 125 mT. On remarque sur les images présentées sur la figure 2.38 que certains domaines magnétiques semblent coupés. L'interaction de la pointe MFM avec l'aimantation de l'échantillon peut en effet modifier la texture magnétique au cours du balayage. Le passage de la pointe au-dessus d'un domaine magnétique ajoute une composante de champ magnétique hors plan suffisant au retournement de l'aimantation à certains endroits. Enfin, à 172 mT le système est saturé. Ces images ne nous permettent pas d'établir précisément une dépendance en champ de la taille des bulles magnétiques. En effet, au cours d'un des balayages la pointe a subi des dommages importants, augmentant considérablement son rayon de courbure et ainsi la taille apparente des domaines magnétiques. D'autre part, l'interaction visible de la pointe sur les domaines magnétiques entraîne des incertitudes non négligeables quant à la taille des domaines à l'équilibre. La détermination de la constante de DMI à partir de ces données serait alors très imprécise.

Les images MFM de la figure 2.39 ont été réalisées après désaimantation de l'échantillon. La procédure de désaimantation consiste en des va-et-vient du champ magnétique appliqué avec une décroissance progressive de l'amplitude, dans le but de briser les longs domaines magnétiques et de créer le plus grand nombre de bulles magnétiques possible. À rémanence (figure 2.39a), les domaines magnétiques clairs apparaissent nettement plus courts que précédemment. À 125 mT (figure 2.39b), presque tous les domaines magnétiques sont devenus des bulles. On peut observer une diminution nette de la largeur des domaines magnétiques. En utilisant la technique de marquage par seuil dans le logiciel Gwyddion, les largeurs de domaines ont été évaluées à 94 ± 5 nm à rémanence et à 58 ± 5 nm à 125 mT. On remarque également que le nombre de domaines magnétiques par unité de surface varie très peu. Par la même technique, des densités d'environ 17.5 domaines/ μm^2 à rémanence et 16.7 domaines/ μm^2 à 125 mT ont été déterminées. Cette observation est cohérente avec le retournement d'aimantation par propagation de parois montré plus tôt.

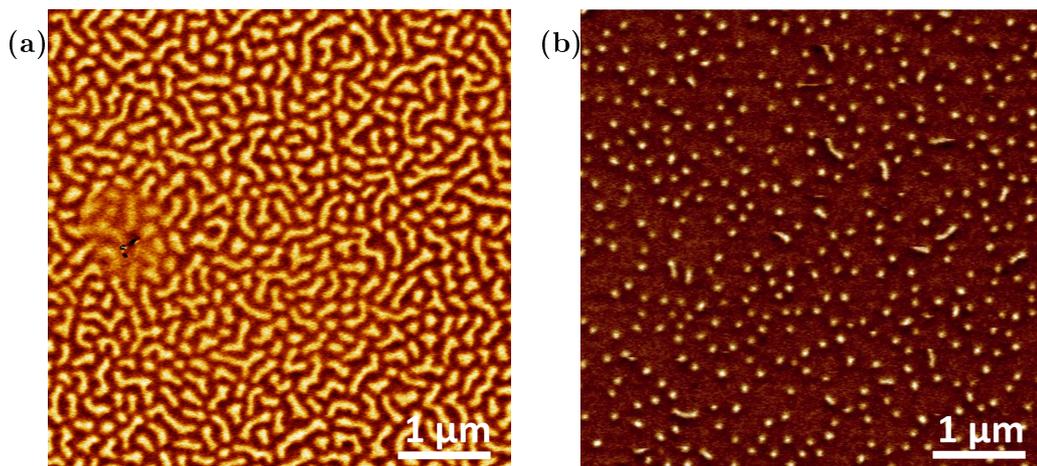


Fig. 2.39 – Images MFM d'une multicouche $Ti(5 \text{ \AA})/Au(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(8 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$ après désaimantation *a)* à rémanence, *b)* à 125 mT.

Ainsi, l'imagerie magnétique par MFM a permis de constater la présence de bulles magnétiques sous un champ magnétique hors plan de 125 mT, et la possibilité de créer de nouvelles bulles magnétiques en suivant une procédure de désaimantation comme décrite plus haut. Cependant, ces images ne nous permettent pas de confirmer ou d'infirmer la présence de la DMI dans les systèmes $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$.

2) Microscopie électronique en transmission en mode Lorentz

L'imagerie magnétique par microscopie électronique en transmission en mode Lorentz (MET-L) est sensible au champ magnétique induit perpendiculaire au faisceau d'électrons. Elle permet donc de visualiser les champs magnétiques induits dans le plan de l'échantillon. Cette technique offre alors la possibilité de déterminer la nature des parois magnétiques d'un système à anisotropie perpendiculaire. Dans le cas des systèmes à aimantation hors plan et à fort DMI d'interface, des parois de Néel sont attendues. Pour réaliser des observations en MET-L, des multicouches $\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ ont été élaborées directement sur des grilles MET (grilles de cuivre recouvertes d'un filet de carbone) par pulvérisation cathodique.

La figure 2.40 présente l'évolution des contrastes de Fresnel en fonction du champ magnétique appliqué (dans la bobine objective). L'échantillon est incliné d'un angle de 20° . Les contrastes de Fresnel sont donc en partie formés par la composante hors plan des domaines magnétiques plutôt que par le champ magnétique induit dans la paroi. Il est nécessaire d'appliquer une défocalisation importante d'environ 2 mm pour distinguer les premiers contrastes magnétiques. Pour plus de clarté, l'image réalisée à 200 mT (supérieur au champ de saturation) a été soustraite aux autres images, après recadrage entre elles.

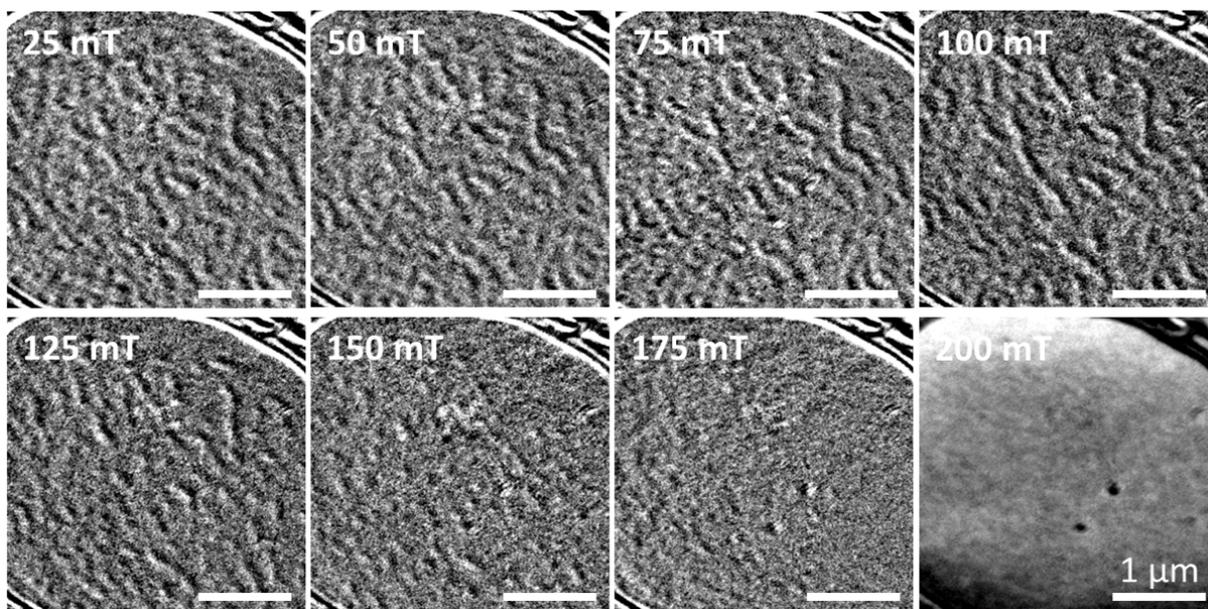


Fig. 2.40 – Images MET-L sur-focalisées d'une multicouche $\text{Au}(50 \text{ \AA})/[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}/\text{Au}(30 \text{ \AA})$ inclinée de 20° sous un champ magnétique hors plan variant de 25 à 200 mT. Les images ont été réalisées sur un microscope Jeol JEM-3010.

L'évolution des contrastes observés, en particulier leur disparition à 200 mT, où l'aimantation du système est saturée, confirme la nature magnétique de ces contrastes. Les valeurs de champ indiquées sur chacune des images correspondent au champ magnétique B émis par la lentille objective, parallèle au faisceau d'électrons. La composante du champ magnétique perpendiculaire au plan de l'échantillon est donc $B_{\perp} = B \cos 20^{\circ}$. La présence d'une composante du champ magnétique dans le plan de l'échantillon pourrait expliquer l'arrangement particulier des domaines magnétiques qui semblent s'aligner les uns par rapport aux autres. Pour un champ magnétique hors plan de $B_{\perp} = 141$ mT ($B = 150$ mT), la texture magnétique est composée de domaines en forme de bulles. L'échantillon apparaît complètement saturé pour $B_{\perp} = 188$ mT ($B = 200$ mT). Cela correspond aux résultats obtenus précédemment par MFM, où la disparition des longs domaines magnétiques est observée à 125 mT, et la saturation à 172 mT.

La figure 2.41 présente des images réalisées sur un échantillon du même type en vue plane avec un champ magnétique hors plan de 85 mT*. Trois images sur-focalisée, focalisée (non montrée) et sous-focalisée ont été réalisées, permettant de reconstruire une carte des champs magnétiques induits par la méthode TIE. Les images sous et sur-focalisées présentent des contrastes de Fresnel inversés entre eux. Les parois de Néel ne créant pas de contrastes de Fresnel en vue plane [119], la présence de contrastes magnétiques dans les images réalisées en vue plane indique que les parois magnétiques sont (au moins en partie) des parois de Bloch. L'image en couleur de la figure 2.41 représente la direction des champs magnétiques induits, montrant une texture magnétique en bulles dont les parois de Bloch tournent dans les deux sens (les flèches blanches indiquent le sens de rotation des moments magnétiques dans la paroi). Une rotation horaire (antihoraire) des moments magnétiques crée un contraste blanc (noir) dans l'image sur-focalisée et noir (blanc) dans l'image sous-focalisée. Ces parois de Bloch agissent comme des lentilles magnétiques convergentes (divergentes). La présence de parois de Bloch démontre l'absence d'une forte DMI. Néanmoins, les parois de Néel étant invisibles en contrastes de Fresnel, les parois sont potentiellement mixtes (Néel + Bloch). La technique DPC en mode METB devrait permettre de lever cette incertitude.

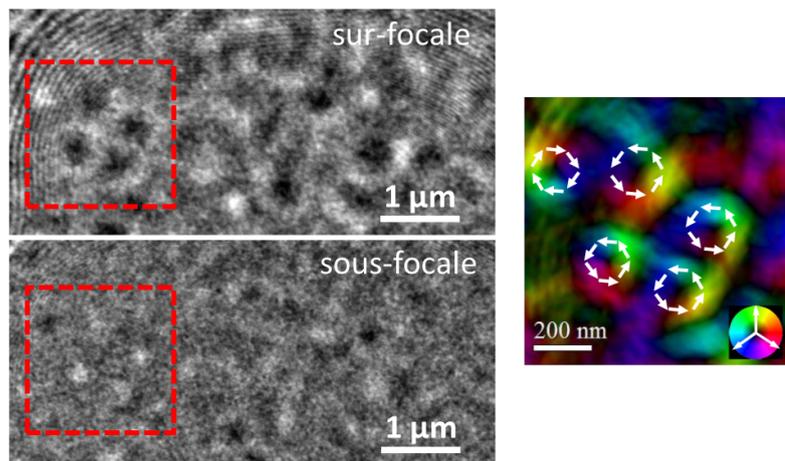


Fig. 2.41 – Contrastes de Fresnel sur et sous-focalisés, ainsi que la reconstruction par TIE du champ magnétique induit.

*. Images réalisées sur microscope Hitachi HF-3300 par Aurélien Masseboeuf au CEMES à Toulouse

La figure 2.42 présente les signaux mesurés par chacun des cadrans A , B , C et D , où aucun contraste magnétique n'apparaît*. Les composantes orthogonales du champ magnétique induit sont calculées par soustraction des signaux des cadrans opposés $(A + B) - (C + D)$ et $(A + D) - (B + C)$. Des contrastes sont nettement visibles à cette étape du traitement. Enfin, l'image en couleur est une reconstruction de la direction des champs magnétiques induits, réalisée à l'aide du logiciel DigitalMicrograph, la roue dans le coin en bas à droite représentant le code couleur associé aux directions. Le cercle tracé en pointillés sur chacune des images représente la même zone de l'échantillon. Le code couleur de cette zone traduit une rotation des champs magnétiques induits, image d'une bulle magnétique de 290 nm à paroi de Bloch, nettement plus grande que les bulles magnétiques observées par MFM sur les mêmes systèmes. Le remplacement du substrat de Si oxydé par une grille MET, où le film mince est suspendu, peut être une cause de la modification de texture magnétique. D'autre part, les échelles latérales sont définies par la calibration du MET, dépendant des conditions d'utilisation. L'observation d'une zone connue est usuellement réalisée avant toute mesure afin d'établir une calibration juste. Cette manipulation n'a pu être réalisée avant nos observations magnétiques.

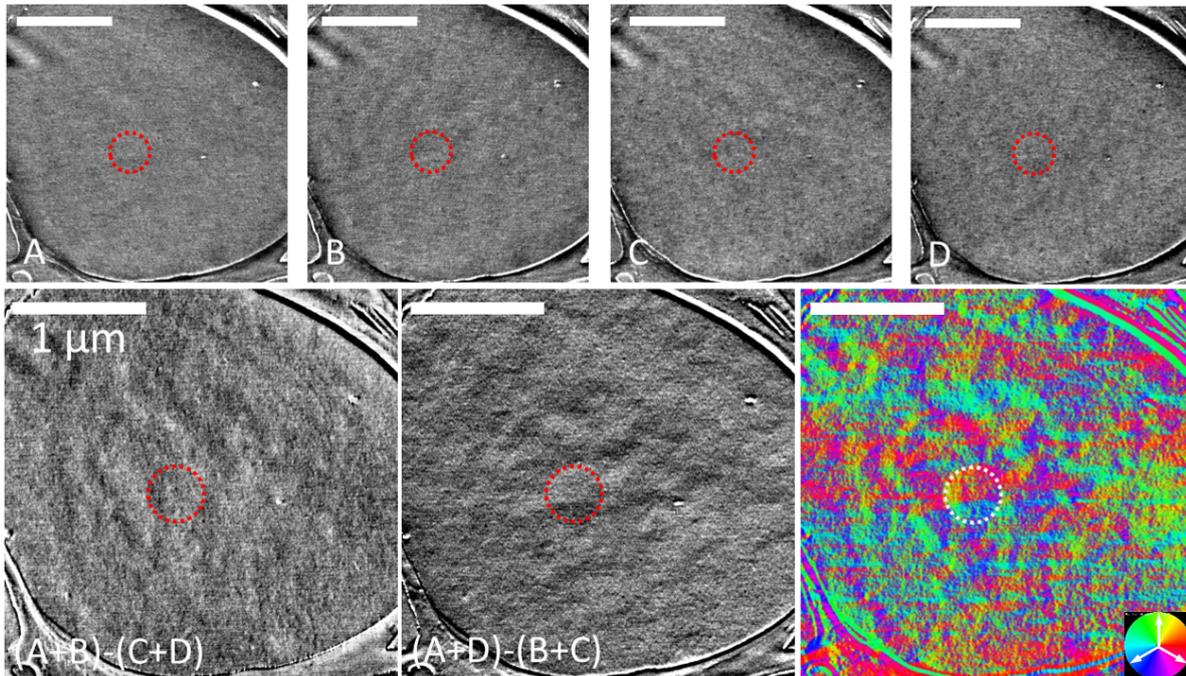


Fig. 2.42 – *Technique DPC. Intensité mesurée par chacun des 4 cadrans (A , B , C , D), extraction des composantes opposées $((A+B)-(C+D)$ et $(A+D)-(B+C)$), et reconstruction de la carte de champ induit. Les cercles rouges ou blanc représentent la même zone dans chacun des clichés.*

Ainsi, l'imagerie magnétique par MET-L réalisée selon deux techniques a permis d'observer la rotation des moments magnétiques dans les parois et de les qualifier de parois de Bloch. La DMI n'est donc pas assez forte dans les multicouches $[\text{Au}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Pd}(10 \text{ \AA})]_{10}$ pour induire une transition des parois de Bloch en parois de Néel. Une faible contribution de la DMI n'est cependant pas à exclure.

*. Images réalisées sur un microscope FEI TITAN Themis avec Jean-Luc Rouvière au CEA Grenoble

3) Spectroscopie Brillouin

La spectroscopie Brillouin s'est révélée très utile pour la détermination de la valeur de la constante de DMI [158, 159]. Cette technique est basée sur la diffusion inélastique de la lumière par les ondes présentes dans un matériau, en particulier les magnons. L'échantillon est illuminé avec un faisceau laser d'une longueur d'onde λ de l'ordre de 500 nm. Il est possible d'ajuster le vecteur d'onde dans le plan k_{SW} en adaptant l'angle d'incidence θ du faisceau laser : $k_{SW} = 4\pi \sin(\theta)/\lambda$. Le vecteur d'onde peut ainsi être varié entre 0 et $20 \mu\text{m}^{-1}$. La grandeur mesurée est le décalage en fréquence de la lumière après interaction avec le matériau. Un spectre se présente sous la forme de deux pics situés aux fréquences Stokes $f_S < 0$ (création d'une onde de spins) et anti-Stokes $f_{AS} > 0$ (annihilation d'une onde de spins). Le détecteur, composé d'un interféromètre Fabry-Perot et d'un photodétecteur, permet de mesurer des fréquences variant de 0.2 à 500 GHz avec une résolution proche de 50 MHz. En général, $f_S = -f_{AS}$, mais la présence de DMI entraîne une asymétrie de propagation des ondes de spins. Cette asymétrie est directement liée à la valeur de la DMI D_{eff} par [160] :

$$\Delta f = |f_S| - f_{AS} = \frac{2\gamma}{\pi M_S} D_{eff} k_{SW}$$

avec M_S l'aimantation à saturation et γ le rapport gyromagnétique. Ainsi, la spectroscopie de Brillouin permet une estimation simple et directe de la constante de DMI. Elle s'est en effet déjà révélée efficace pour accéder à la valeur de la DMI d'interface dans des systèmes à interfaces non symétriques et à aimantation perpendiculaire tels que les tricouches Pt/Co/AlOx [160] et Pt/CoFeB/MgO [161]. Néanmoins, il n'existe pas à notre connaissance de résultats publiés de spectroscopie Brillouin réalisée sur des systèmes à multicouches.

Des spectres ont été mesurés sur un échantillon Ti(5 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6.6 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å)*. L'échantillon est saturé par l'application d'un champ magnétique de 900 mT dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au faisceau lumineux incident. La présence de la DMI s'exprime par une asymétrie en fréquence des raies Stokes et anti-Stokes qui augmente avec le nombre d'onde de la lumière incidente. La figure 2.43 présente deux spectres de Brillouin mesurés pour des vecteurs d'onde $k_{SW} = 15.18$ et $20.45 \mu\text{m}^{-1}$. Après plus de 14 heures d'accumulation le signal est très faible et les pics très larges (~ 6 GHz). On constate un décalage en fréquence très faible $\Delta f = 0.12$ et 0.16 GHz. En comparaison, les valeurs reportées pour des mesures réalisées pour des vecteurs d'onde similaires sur des tricouches Pt/Co/AlOx sont supérieures à 2 GHz, avec des largeurs de pics de l'ordre de 3 GHz [160].

Ces mesures semblent donc indiquer l'absence de DMI dans ces systèmes. Cependant, il a été montré que l'épaisseur de matériau non magnétique influe considérablement sur la valeur de la constante de DMI d'interface. En effet, Tacchi *et al.* montrent une augmentation du décalage en fréquence mesuré dans des bicouches Pt/CoFeB avec l'épaisseur de Pt [162]. Une saturation est observée pour une épaisseur de Pt de 2 nm, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que sa longueur de diffusion de spin $\lambda_{sd}(Pt) \approx 1.2$ nm. L'hypothèse d'un lien entre la longueur de diffusion de spins et l'épaisseur critique en deçà de laquelle la DMI d'interface diminue est alors émise. Dans notre cas, les couches de Pd ont

*. Expériences réalisées par Mohamed Belmeguenai, chercheur au LSPM de l'université Paris 13

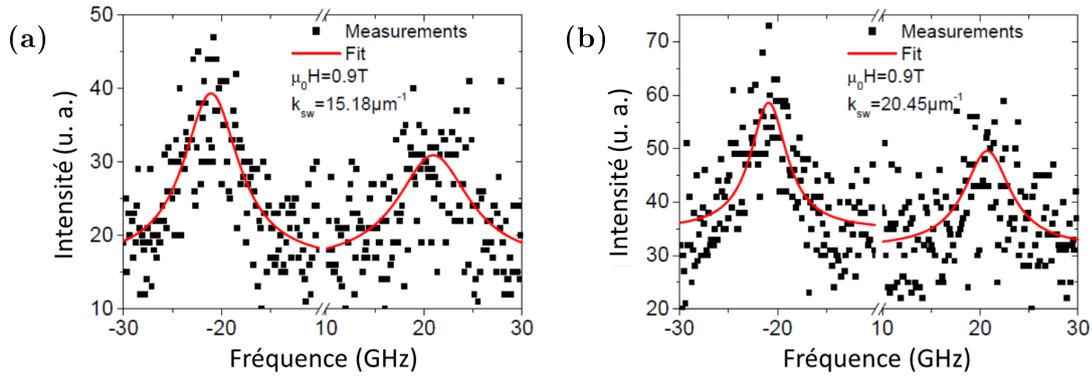


Fig. 2.43 – Spectres Brillouin réalisés sur $Ti(5 \text{ \AA})/Au(50 \text{ \AA})/[Au(10 \text{ \AA})/Co(6.6 \text{ \AA})/Pd(10 \text{ \AA})]_{10}/Au(30 \text{ \AA})$ sous 900 mT appliqué dans le plan, pour des vecteurs d'onde planaire k_{SW} a) $15.18 \mu\text{m}^{-1}$ et b) $20.45 \mu\text{m}^{-1}$.

une épaisseur de 1 nm , avec une longueur de diffusion $\lambda_{sd}(Pd) \approx 5 \text{ nm}$. En comparaison à des systèmes existants, tels que les multicouches $[Pt(10 \text{ \AA})/Co(6 \text{ \AA})/Ir(10 \text{ \AA})]_n$, dans lesquelles une constante de DMI de 1.4 mJ/m^2 a été mesurée [87], les longueurs de diffusion de spins des métaux lourds sont $\lambda_{sd}(Pt) \approx 1.2 \text{ nm}$ et $\lambda_{sd}(Ir) \approx 0.5 \text{ nm}$, proches des épaisseurs des couches déposées. Dans une étude de la variation de la DMI par insertion d'une couche d'espacement au niveau d'une interface Pt/Co, un maximum de la DMI est mesuré pour une épaisseur d'Ir proche de 7 \AA [89].

Un effet de la rugosité des interfaces est également attendu. Des calculs *ab initio* ont montré qu'une interdiffusion de 25% aux interfaces Pt/Co entraîne une réduction de moitié du coefficient de DMI [110]. Cet effet a également été montré expérimentalement pour des tricouches Pt/Co/Pt [89]. Alors que des tricouches déposées par pulvérisation cathodique possèdent une DMI forte ($\approx 0.8 \text{ mJ/m}^2$), le même système épitaxié, présentant des interfaces Pt/Co et Co/Pt identiques, possède une DMI effective nulle.

La question de la continuité des couches se pose aussi. En effet, si les couches d'Au et de Pd ne sont pas continues, les interfaces seraient du type Co/(Pd,Au) et (Au,Pd)/Co. Cela entraînerait donc la formation d'interfaces presque symétriques, et donc une diminution de la DMI effective. Cependant, d'après les mesures de réflectivités de rayons X et les valeurs reportées dans la littérature, les épaisseurs nominales de nos multicouches (1 nm de Pd et d'Au et 6.6 \AA de Co) sont suffisamment épaisses pour s'affranchir de ce problème.

D'autre part, les couches de Co n'étant séparées que par 2 nm de matériau, il est possible qu'elles soient couplées entre elles (couplage dipolaire). Dans ce cas, la multicouche se comporte comme une couche magnétique de $10 \cdot t_{Co} = 6.6 \text{ nm}$ d'épaisseur. Comme l'effet de la DMI est interfacial [109], une augmentation de l'épaisseur de matériau ferromagnétique t_{FM} entraîne une diminution du signal : $\Delta f \propto D_{eff} \propto D_S/t_{FM}$ (D_{eff} est la constante de DMI efficace et D_S la constante de DMI surfacique).

Ainsi, la spectroscopie Brillouin semble peu adaptée à notre système tel qu'il est actuellement. Cependant, de simples modifications d'épaisseurs ou du nombre de répétitions permettraient d'ajuster notre système à des mesures de spectroscopie Brillouin (épaisseurs des métaux lourds supérieures à la longueur de diffusion de spin, une seule tricouche, ...) tout en conservant les mêmes interfaces, et donc *a priori* les mêmes contributions surfaciques de la DMI.

L'imagerie magnétique par MFM a révélé une texture magnétique intéressante en bulles, dont la taille varie de 95 à 55 nm avec un champ magnétique appliqué hors plan. La microscopie MET-L a permis de conclure quant à la nature des parois de ces bulles magnétiques. La présence d'une contribution de Bloch des parois indique que la DMI ne peut être que faible. Un perfectionnement de la technique DPC en mode MET-L pourrait permettre de confirmer ou d'infirmer l'absence d'une contribution de Néel dans les parois. Enfin, les spectres Brillouin n'ont pas permis d'extraire une constante de DMI. Néanmoins, ces observations ne permettent pas d'affirmer l'absence d'une DMI faible, dont les effets pourraient potentiellement être exacerbés par ajustement des contributions des autres interactions magnétiques en modifiant les paramètres de dépôt.

C. Conclusion et perspectives pour les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$

Les multicouches $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Pd}]_n$ possèdent donc un fort potentiel pour des applications à des expériences de transfert de spins. En effet, malgré l'absence de DMI apparente, la petite taille des domaines magnétiques (< 100 nm) et leur organisation dans des nanostructures dont la largeur est proche de la taille des domaines présentent un fort intérêt. Des mesures de déplacement de parois par application d'un champ magnétique et/ou d'un courant électrique seraient alors très intéressantes, la vitesse de parois étant un paramètre critique des technologies de l'information. De telles expériences offriraient également la possibilité d'évaluer la DMI, aussi faible soit-elle. Enfin, une étude de la dépendance des paramètres magnétiques en fonction des épaisseurs de Co, d'Au et de Pd, ainsi que des rugosités d'interfaces, serait très instructive. Celle-ci permettrait d'améliorer le système et éventuellement d'augmenter la contribution de la DMI, privilégiant la formation de parois de Néel favorables à un déplacement de parois rapide et peu coûteux en énergie. C'est dans cette optique que des coins d'épaisseurs des multicouches $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{W}]_n$ ont été élaborés.

V Dépendance en épaisseurs des propriétés magnétiques des multicouches [Pt/Co/W]₁₀

Dans le premier chapitre, le système [Pt/Co/W]_n présentait un comportement magnétique non expliqué. Ce système a alors été étudié plus précisément. Pour cela, un double coin d'épaisseur, en Co dans une direction et en Pt et W dans l'autre, a été réalisé par pulvérisation cathodique sur un substrat de SiO_x de 4 pouces de diamètre*. La figure 2.44 présente un schéma des gradients d'épaisseurs en fonction de la position sur la plaque de SiO_x. Les gradients d'épaisseurs n'étant pas constants sur toute la surface, les mesures magnétiques réalisées seront présentées en fonction de la position sur la plaque et non en fonction des épaisseurs des matériaux. Le système étudié est Ta(30 Å)/[Pt(*t_{Pt}*)/Co(*t_{Co}*)/W(*t_W*)]₁₀/Al(20 Å), les épaisseurs nominales de Pt, Co et W variant de 6 à 13 Å.

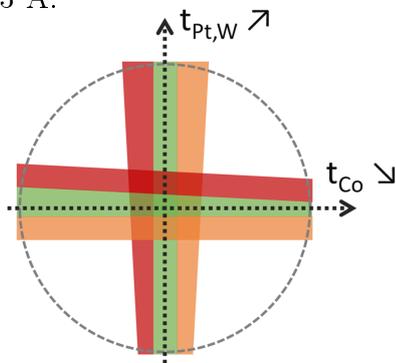


Fig. 2.44 – Schéma du double coin d'épaisseur [Pt/Co/W]₁₀. L'épaisseur de Co (en vert) décroît de la gauche vers la droite, les épaisseurs de Pt (en orange) et de W (en rouge) augmentent du bas vers le haut.

Une première étude du système permettra d'identifier les zones d'intérêt du double coin d'épaisseur. À la suite de cela, des caractérisations magnétiques plus précises seront réalisées afin d'extraire les paramètres magnétiques de la multicouche [Pt/Co/W]₁₀ et d'observer leur dépendance avec les épaisseurs de Co, de Pt et de W.

A. Cartographies magnétiques

Dans un premier temps, des mesures d'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) ont été réalisées†. Le nanoMOKE permet d'établir une cartographie des cycles magnétiques sur tout l'échantillon. Les cycles ont été mesurés à température ambiante, tous les 1.5 mm, avec un champ magnétique appliqué entre -180 et 180 mT. La géométrie du NanoMOKE utilisé pour ces mesures est représentée en encart de la figure 2.45. Le laser a un angle d'incidence de 45°, et le champ magnétique est appliqué de telle façon que la composante planaire est égale à cinq fois la composante perpendiculaire $B_{\parallel} = 5B_{\perp}$. Le signal mesuré est alors une somme du signal polaire et du signal longitudinal. La polarisation de la lumière incidente et la position de l'analyseur sont telles que les cycles apparaissent avec un signe positif lorsque l'anisotropie perpendiculaire est forte tandis que les cycles avec un signe négatif témoignent d'une anisotropie perpendiculaire faible voire d'une anisotropie planaire. Ces mesures préliminaires permettent alors d'identifier rapidement les zones où l'échantillon est magnétique et dont l'aimantation est hors plan.

*. Dépôt réalisé par Stephane Auffret à Spintec, Grenoble

†. Mesures réalisées par Ricardo Sousa à Spintec, Grenoble

La figure 2.45 présente la cartographie des cycles magnétiques réalisée sur le système $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{W}]_{10}$. Trois régimes magnétiques apparaissent sur cette cartographie. Dans la première région, à droite, aux petites épaisseurs de Co, le signal Kerr est quasi-nul. L'aimantation est donc très faible voire nulle. Il a été vu précédemment que pour des faibles épaisseurs de Co l'interdiffusion au niveau des interfaces peut être importante et donner naissance à des alliages non magnétiques tels que le CoW. La deuxième région identifiable, représentée en fond bleu en haut à gauche, montre un fort signal Kerr et des cycles magnétiques ouverts. Ainsi, pour des couches épaisses de métaux lourds, la multicouche se comporte comme un ferromagnétique dur à anisotropie perpendiculaire, avec une rémanence et une coercivité fortes. L'interdiffusion au niveau des interfaces pourrait à nouveau expliquer ce comportement magnétique. En effet, au cours de ces 50 dernières années, il a été montré à maintes reprises que l'alliage CoPt, probablement formé aux interfaces Pt/Co de notre système, présente les caractéristiques d'un ferromagnétique dur. Enfin, dans la dernière région, en violet en bas à gauche, le signal Kerr est négatif et intense, et les cycles d'hystérésis sont fermés. La multicouche possède donc une anisotropie perpendiculaire faible ou une anisotropie planaire pour des couches de Co épaisses et des faibles épaisseurs de Pt et de W.

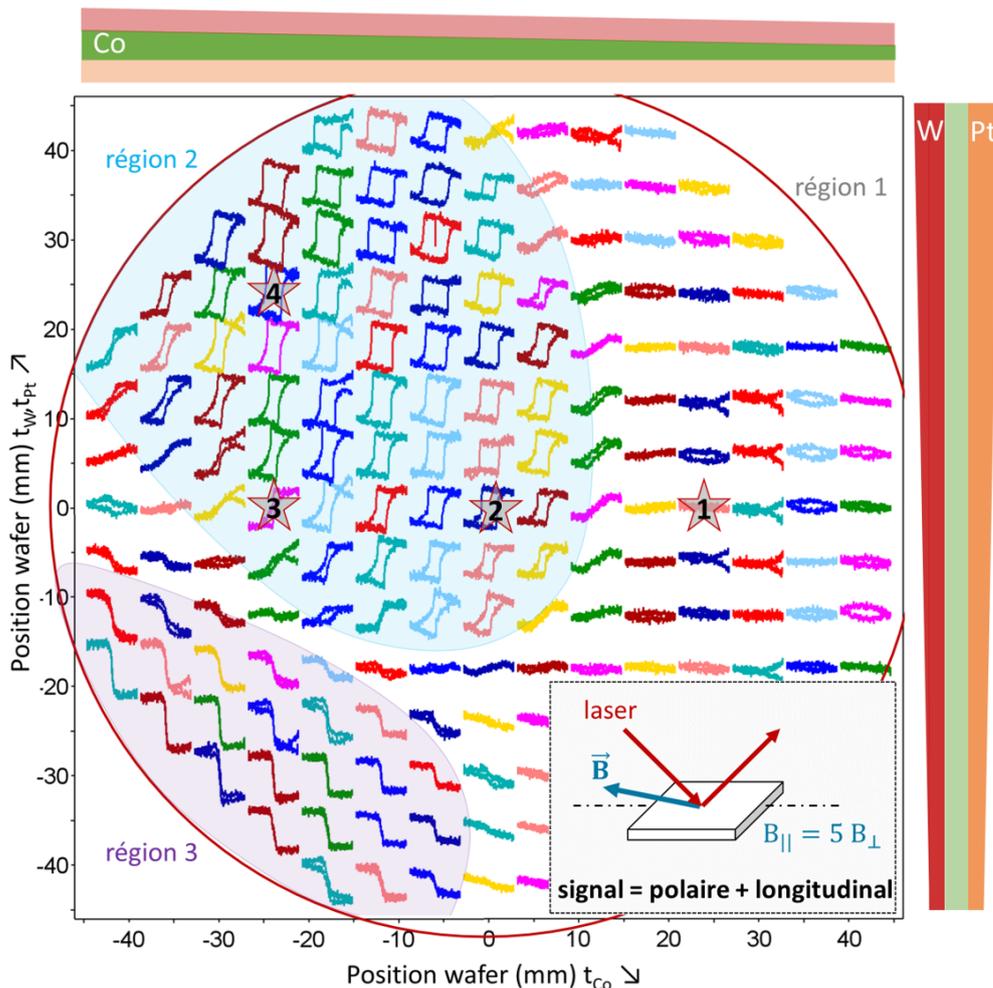


Fig. 2.45 – Cartographie des cycles Kerr du double coin d'épaisseur $[\text{Pt}(t_{\text{Pt}})/\text{Co}(t_{\text{Co}})/\text{W}(t_{\text{W}})]_{10}$. En encart est représenté la géométrie du NanoMOKE.

Des mesures de réflectivités aux rayons X ont été menées afin d'extraire les valeurs de rugosités et d'épaisseurs des couches de Pt, de Co et de W. Ces mesures ont été réalisées sur des échantillons $5 \times 5 \text{ mm}^2$ afin d'obtenir des mesures exploitables. La mesure d'un échantillon de petite taille permet de limiter l'empreinte du faisceau et ainsi les effets de moyennage d'épaisseurs et de rugosités. Ces échantillons ont été prélevés de la plaque aux endroits indiqués par des étoiles numérotées sur la figure 2.45. La figure 2.46 présente les mesures de réflectivités et leur ajustement pour les quatre zones, ainsi que les épaisseurs de Pt, W et Co pour chacune d'elle. D'après les valeurs d'épaisseurs extraites de ces mesures, la variation d'épaisseur sur 5 mm est inférieure à 0.5 \AA . Les mesures de réflectivités sont donc fiables. Les rugosités extraites de ces mesures sont : $\sigma_{Pt} = 2.5 \pm 0.5 \text{ \AA}$, $\sigma_W = 2.7 \pm 0.5 \text{ \AA}$ et $\sigma_{Co} = 4.5 \pm 0.5 \text{ \AA}$. La rugosité des couches de Co est donc proche de leur épaisseur, en particulier dans la région 1. Cela indique que pour des couches minces de Co, la quasi-totalité du Co est en réalité mélangée au W déposé au-dessus. Cette forte rugosité d'interface entre le Co et le W est probablement à l'origine de l'absence de signal Kerr dans la région 1 de la figure 2.45.

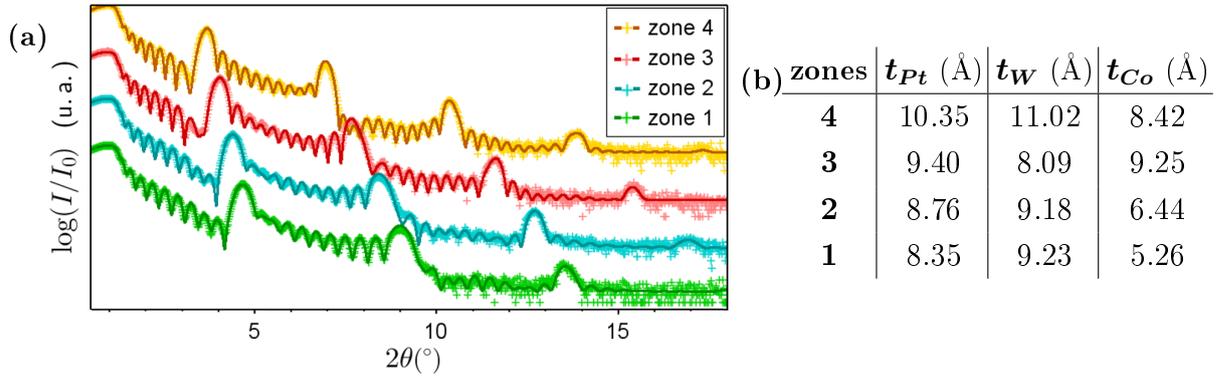


Fig. 2.46 – *a)* Réflectivités de rayons X et ajustements (en traits pleins) des données pour 4 zones de la plaque. *b)* Épaisseurs des couches de Pt, W et Co extraites de ces ajustements.

La cartographie des cycles magnétiques mesurée au nanoMOKE a permis d'identifier les régions de la multicouche où l'aimantation est hors plan. Une anisotropie perpendiculaire est nécessaire à la formation de domaines magnétiques entrelacés, ou en bulles, voire de skyrmions, mais pas suffisante. Les domaines magnétiques des régions 2 et 3 de la plaque ont donc été imagés par MFM. Le système a été désaimanté au préalable. En effet, la multicouche étant 100 % rémanente dans la région 2, aucun contraste magnétique ne peut apparaître sans désaimantation. La procédure de désaimantation consiste en l'application d'un champ magnétique hors plan, selon des oscillations d'amplitude décroissante partant de 125 mT à 0 mT par pas de 5 mT. Afin de limiter les effets de création/annihilation de domaines magnétiques, une pointe MFM à faible moment magnétique (20 nm de CoCr) a été utilisée*. La figure 2.47 présente une cartographie des images MFM. La partie de la plaque hors cadre ne présente aucun contraste magnétique. Le fond en couleur représente l'amplitude du signal Kerr. Les deux régions identifiées précédemment sont ainsi mises en évidence. Quelle que soit la région balayée, le signal

*. Pointes fabriquées par Simon Le Denmat à l'Institut Néel, Grenoble

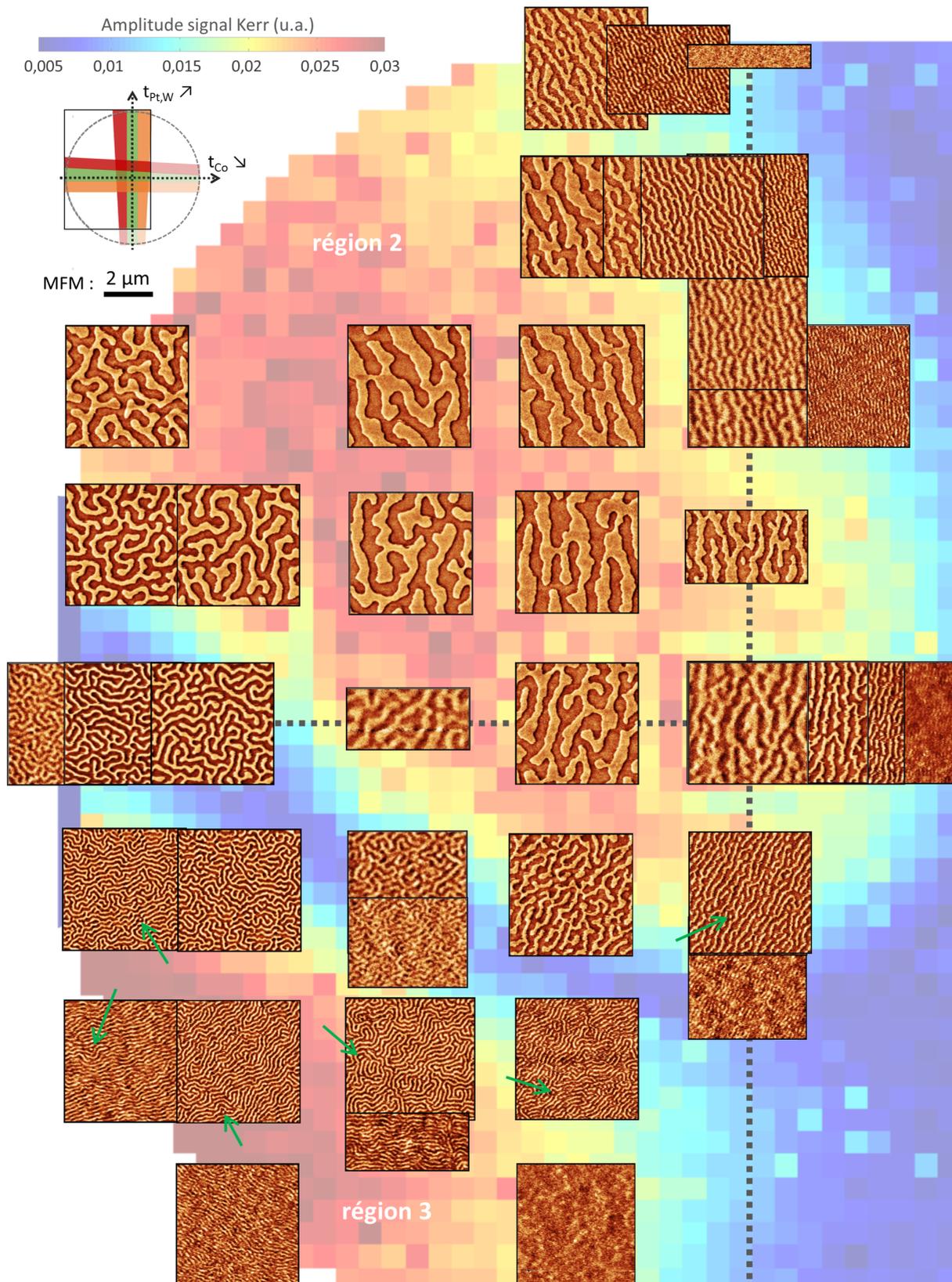


Fig. 2.47 – Cartographie d'imagerie magnétique du double coin d'épaisseur $[Pt(t_{Pt})/Co(t_{Co})/W(t_W)]_{10}$. L'épaisseur de Co diminue de gauche à droite et les épaisseurs de Pt et W augmente de bas en haut. Les couleurs représentent l'amplitude du signal Kerr. L'échelle commune à toutes les images est indiquée en haut à gauche.

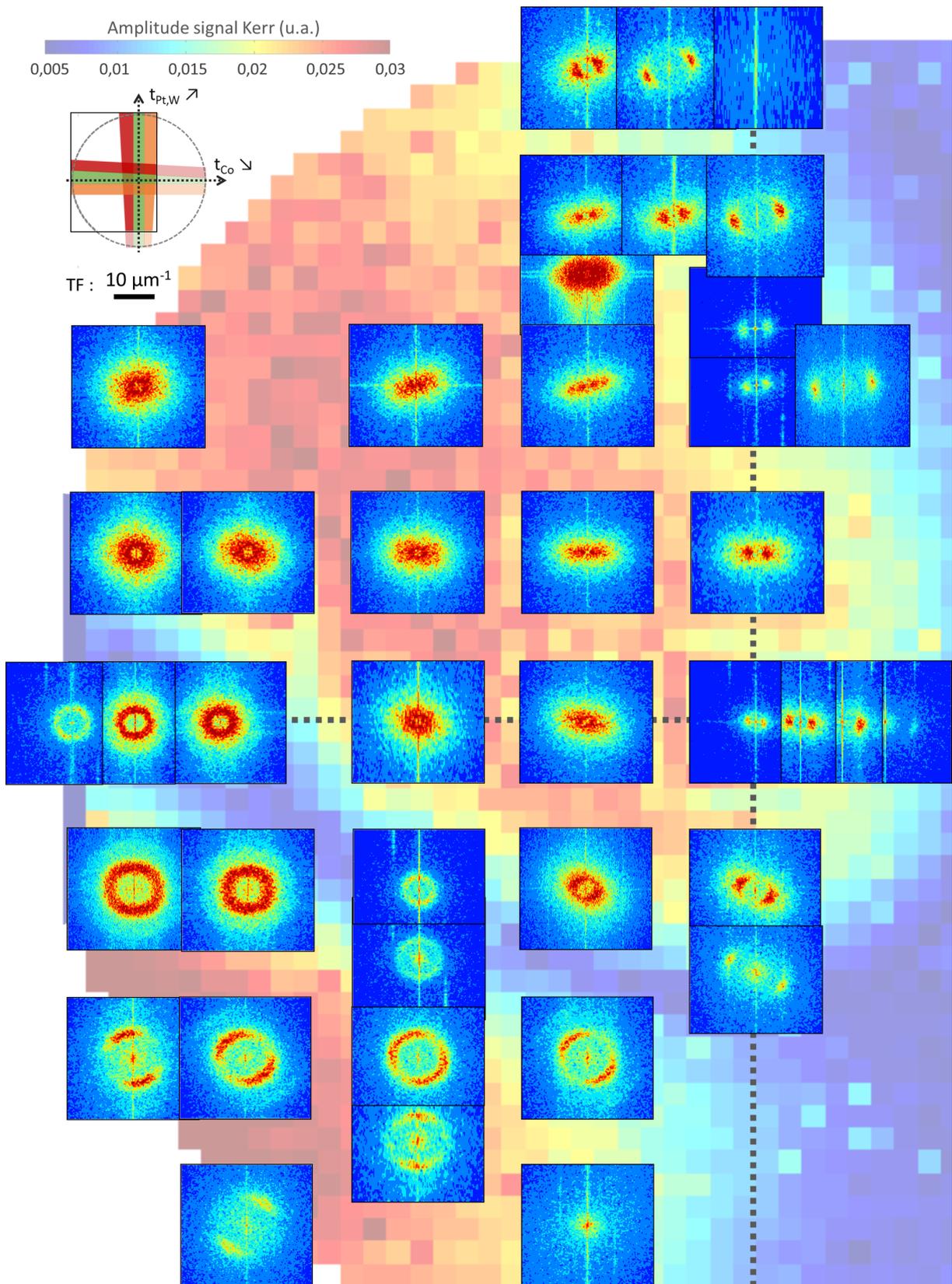


Fig. 2.48 – Cartographie des transformées de Fourier des images MFM. Les couleurs représentent l'amplitude du signal Kerr. L'échelle commune à toutes les images est indiquée en haut à gauche.

magnétique est fort, et la texture magnétique est composée de domaines entrelacés. Dans la région 2 (en haut), les domaines magnétiques sont très larges et s'affinent aux abords de la région 1 non magnétique. Dans la région 3, le même phénomène est observé, mais les domaines magnétiques sont plus fins que dans la région 2, et quelques bulles magnétiques sont visibles au milieu des longs domaines (indiquées par des flèches vertes). Afin de quantifier précisément la taille des domaines magnétiques, chacune des images MFM a subi une transformation de Fourier. La figure 2.48 présente une cartographie de ces transformées de Fourier, à partir desquelles il est possible d'extraire une période des motifs magnétiques en fonction de la position sur le double coin d'épaisseur. Ces valeurs sont reportées sur la figure 2.49. La taille des domaines magnétiques L varie alors entre 70 et 435 nm en fonction des épaisseurs de Co, Pt et W. D'autre part, la figure 2.48 met en évidence l'apparition d'une anisotropie des textures magnétiques à certains endroits de la multicouche. Certaines figures de Fourier sont circulaires, mais d'autres présentent une direction préférentielle très nette. Ce motif est visible principalement aux abords de la région non magnétique. La procédure de désaimantation n'est *a priori* pas la cause de cette anisotropie d'orientation des domaines puisque la plaque entière a été désaimantée en une seule fois, et la direction préférentielle observée n'est pas la même partout. Un désaxage du champ magnétique hors plan pendant la désaimantation ne peut donc pas expliquer cette anisotropie. La présence de rubans faibles pourrait être la cause de cette orientation apparente des domaines [114]. Cette texture magnétique apparaît pour des faibles anisotropies magnétiques, probables à la transition entre les régions à forte aimantation perpendiculaire et la région où l'aimantation est nulle.

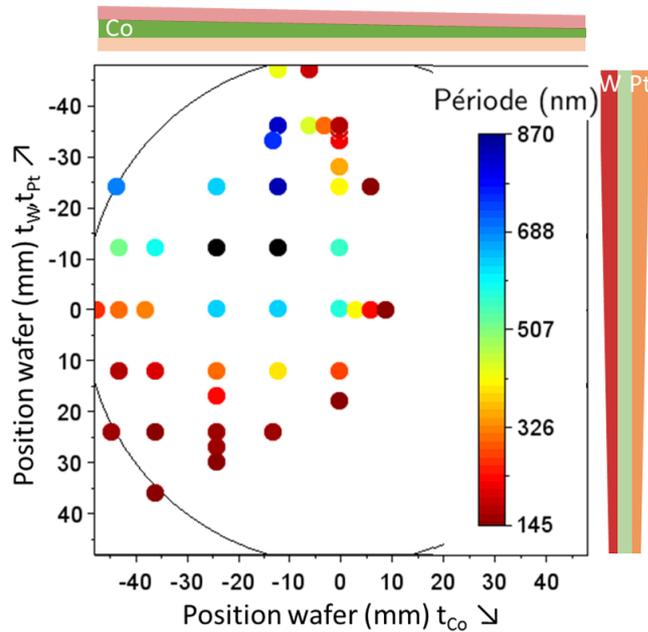


Fig. 2.49 – Cartographie des périodes magnétiques.

Les cartographies réalisées par nanoMOKE et MFM permettent ainsi de distinguer trois régions du double coin d'épaisseurs [Pt(t_{Pt})/Co(t_{Co})/W(t_W)]₁₀ dont le comportement magnétique diffère. Ces trois régimes magnétiques peuvent être résumés comme suit :

région 1 : $t_{Co} \leq 6 \text{ \AA}$

aimantation faible ou nulle

région 2 : $t_{Co} \geq 6 \text{ \AA}$ et $t_{Pt}, t_W \geq 8 \text{ \AA}$

ferromagnétique dur (coercitif non nul et rémanence proche de 100 %),
domaines magnétiques longs et larges ($L = 250 - 500 \text{ nm}$)

région 3 : $t_{Co} \geq 6 \text{ \AA}$ et $t_{Pt}, t_W \leq 8 \text{ \AA}$

ferromagnétique doux (coercitif et rémanence nuls),
domaines magnétiques entrelacés étroits mêlés de bulles ($L = 70 - 150 \text{ nm}$)

Un champ coercitif faible et une rémanence quasi-nulle sont primordiaux pour réaliser des expériences de propagation de parois. La troisième région semble alors être la plus adaptée pour des applications à la spintronique et l'observation éventuelle de skyrmions. Une étude plus approfondie du double coin d'épaisseur permettra d'établir la dépendance en épaisseurs des paramètres magnétiques, et d'améliorer le système par la suite.

B. Extraction des paramètres magnétiques

La détermination précise des paramètres magnétiques de la multicouche [Pt(t_{Pt})/Co(t_{Co})/W(t_W)]₁₀ en fonction des épaisseurs nécessite de prélever des échantillons dans la plaque. Le nombre des zones étudiées est limité à 4 pour l'instant. Ces zones sont marquées par des étoiles numérotées sur la figure 2.45. Des mesures de réflectivité de rayons X et de magnétométrie ont été réalisées sur ces 4 morceaux afin d'en extraire les paramètres magnétiques.

Rappelons que la zone 1 se situe dans la région où les épaisseurs de Co sont faibles. La zone 2 se situe proche du milieu du double coin d'épaisseur. Les zones 3 et 4 se situent dans la région 2 où la multicouche se comporte comme un ferromagnétique dur, la zone 4 possédant des couches de métaux lourds plus épaisses. Les figures 2.50a) et b) présentent les cycles magnétiques des zones 2, 3 et 4 mesurés par effet Kerr polaire. Le signal Kerr mesuré pour la zone 1 est nul. Les zones 3 et 4 ont une rémanence de 100 % et un champ de saturation faible (10 et 40 mT), tandis qu'il est d'environ 500 mT pour la zone 2. La figure 2.50c présente les cycles d'aimantation dans le plan des 4 zones. L'aimantation à saturation est faible même pour les couches épaisses de Co ($M_{sat} = 1400 \text{ kA/m}$ pour le Co volumique). À partir de ces mesures, il est possible d'extraire les valeurs d'aimantation à saturation M_{sat} ainsi que l'anisotropie effective K_{eff} . Ces valeurs, normalisées par rapport à l'épaisseur totale de Co, sont reportées dans le tableau 2.50d, où les épaisseurs de Co mesurées par réflectivité de rayons X sont rappelées. On remarque deux tendances. À épaisseurs de Pt et de W constantes, l'aimantation augmente avec l'épaisseur de Co ($M_{sat}(1) < M_{sat}(2) < M_{sat}(3)$). À épaisseur de Co constante, et dans la région 2, l'anisotropie effective augmente avec les épaisseurs de Pt et de W ($K_{eff}(3) < K_{eff}(4)$). Il est probable qu'une tendance différente existe dans la région 3, non explorée par manque de temps.

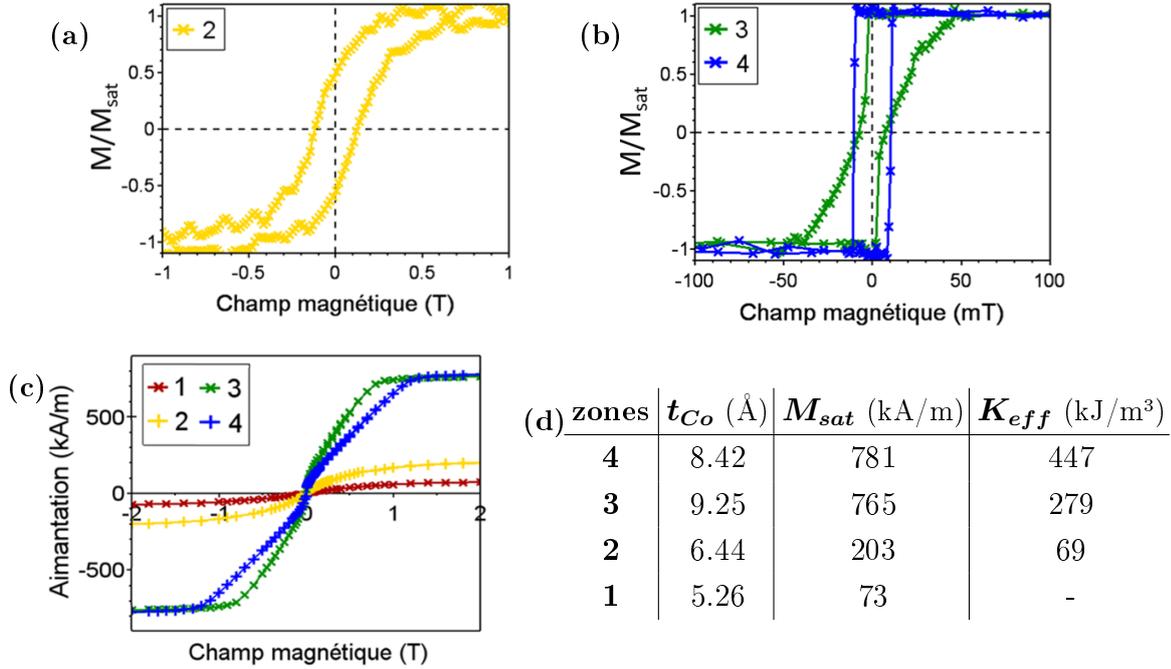


Fig. 2.50 – *a), b)* Mesures Kerr polaires des zones 2, 3 et 4. *c)* Mesures SQUID dans le plan des 4 zones. *d)* Valeurs de paramètres extraits des mesures précédentes. M_{sat} est l'aimantation à saturation et K_{eff} l'anisotropie effective ($K_{eff} > 0$ signifie que l'anisotropie est perpendiculaire).

Comparons désormais nos résultats de la région 2 aux valeurs publiées pour les multicouches $[\text{Ir}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6 \text{ \AA})/\text{Pt}(10 \text{ \AA})]_{10}$ [87] et $[\text{Pt}(30 \text{ \AA})/\text{Co}(9 \text{ \AA})/\text{Ta}(40 \text{ \AA})]_{15}$ [27], où des skyrmions ont été observés. Une façon d'évaluer la constante de DMI est de calculer la densité d'énergie des parois de domaines $\sigma_{DW} = 4\sqrt{AK_{eff}} - \pi D_{eff}$ dans des systèmes avec DMI. La densité d'énergie de paroi peut être calculée d'autre part suivant la formule établie par Kaplan et Gehring [150] et corrigée par Gehanno *et al.* [151] :

$$\sigma_{DW} = D_0 \cdot \frac{1}{2} \mu_0 M_{sat}^2 \quad \text{avec} \quad D_0 = \frac{2 \cdot t_{Co}}{\pi} \cdot \ln \left(\frac{L}{0.955 \cdot t_{Co} \cdot \sqrt{1 + \frac{1}{Q}}} \right)$$

avec μ_0 la perméabilité magnétique du vide, t_{Co} l'épaisseur d'une monocouche de Co, L la largeur des domaines magnétiques (soit la moitié de la période déterminée par les transformées de Fourier des images MFM) et Q le facteur de qualité. La densité d'énergie des parois de domaines a alors été évaluée à $\sigma_{DW} = 1.2 \text{ mJ/m}^2$ pour les zones 3 et 4 du double coin d'épaisseurs. En imposant la constante d'échange $A = 10 \text{ pJ/m}$, il est possible d'évaluer grossièrement la valeur de la constante de DMI et de conclure quant à sa présence dans nos systèmes. Le tableau 2.1 reporte certains paramètres magnétiques et les valeurs de constantes de DMI évaluées selon la procédure décrite précédemment pour notre système $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{W}]_{10}$ et les multicouches $[\text{Ir}(10 \text{ \AA})/\text{Co}(6 \text{ \AA})/\text{Pt}(10 \text{ \AA})]_{10}$ [87] et $[\text{Pt}(30 \text{ \AA})/\text{Co}(9 \text{ \AA})/\text{Ta}(40 \text{ \AA})]_{15}$ [27]. On remarque alors que les valeurs extraites pour les zones 3 et 4 de notre système sont comparables aux valeurs reportées pour les multicouches dans lesquelles des skyrmions ont été observés.

| | Pt/Co/W 3 | Pt/Co/W 4 | Ir/Co/Pt [87] | Pt/Co/Ta [27] |
|---------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| M_{sat} | 765 kA/m | 780 kA/m | 960 kA/m | 600 kA/m |
| Q | 1.8 | 2.2 | 1.3 | 1.7 |
| L | 320 nm | 310 nm | 100 nm | 240 nm |
| σ_{DW} | 1.2 mJ/m ² | 1.2 mJ/m ² | 1.1 mJ/m ² | 0.7 mJ/m ² |
| D_{eff} | 1.7 mJ/m ² | 2.3 mJ/m ² | 1.3 mJ/m ² | 1.3 mJ/m ² |

Tab. 2.1 – *Comparaison des paramètres magnétiques de différents systèmes. M_{sat} est l'aimantation à saturation, Q est le facteur de qualité, L est la largeur des domaines magnétiques, et D_{eff} est la constante de DMI calculée à partir de ces valeurs et en imposant la constante d'échange $A = 10$ pJ/m.*

C. Conclusion et perspectives pour les multicouches [Pt/Co/W]_n

Ainsi, les résultats préliminaires extraits pour les multicouches [Pt/Co/W]_n sont très encourageants. La caractérisation du double coin d'épaisseurs a permis d'observer la formation de trois régions magnétiques distinctes. La première, pour des faibles épaisseurs de Co ($t_{Co} \leq 6$ Å) est non magnétique. Dans la seconde région, pour des couches épaisses de métaux lourds ($t_W, t_{Pt} \geq 8$ Å), la rémanence est de 100 % et la texture magnétique est composée de larges domaines entrelacés ($L = 250 - 500$ nm). Dans la troisième région ($t_{Co} \geq 6$ Å et $t_W, t_{Pt} \leq 8$ Å), le système se comporte comme un ferromagnétique doux et présente des domaines magnétiques entrelacés fins ($L = 70 - 150$ nm) mêlés de bulles magnétiques. Enfin, la caractérisation plus précise de zones réduites de la plaque a permis d'évaluer la constante de DMI $D_{eff} \approx 2$ mJ/m², comparable aux valeurs reportées dans la littérature pour les multicouches [Ir/Co/Pt]_n [87] et [Pt/Co/Ta]_n [27] dans lesquelles des skyrmions ont été observés.

La poursuite de la caractérisation du double coin d'épaisseur [Pt/Co/W]₁₀, en particulier dans la région 3, devrait apporter des précisions quant à la dépendance en épaisseurs des différents paramètres magnétiques. D'autre part, la présence de deux régimes magnétiques offre la possibilité de réaliser un large panel d'expériences. Par exemple, des mesures d'expansion de domaines magnétiques par microscopie MOKE dans la région 2 (rémanence 100 %) pourrait permettre de mesurer une valeur plus précise et fiable de la constante de DMI [163]. Il serait également très intéressant de mener des expériences de magnéto-transport et de propagation de parois contrôlée par le courant, ainsi que d'imagerie magnétique par microscopie de Lorentz dans la région 3 où la rémanence est nulle et les domaines magnétiques étroits.

Conclusions et perspectives

Le sujet de cette thèse était l'élaboration de systèmes intégrables à des dispositifs industriels pouvant accueillir des skyrmions, et permettant la détection de ces éventuels skyrmions. Deux types de systèmes ont été étudiés simultanément : les couches minces de FeGe B20 et les multicouches du type [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2]_n.

Couches minces de FeGe B20

Un protocole de croissance par pulvérisation cathodique (technique plus adaptée à la production industrielle que l'épitaixie par jet moléculaire) pour l'élaboration de couches minces de FeGe B20 a été développé. Le Si (111), qui présente un désaccord de maille de moins de 0.1 % avec le FeGe B20 (111), a été choisi comme substrat. L'insertion entre le substrat et le FeGe d'une fine couche de Fe déposée à haute température entraîne la formation de l'alliage FeSi B20 qui permet de limiter les effets de démixtion et d'interdiffusion, et d'améliorer la qualité cristalline du FeGe B20. Les paramètres optimaux de dépôts tels que la température, la pression d'argon et les vitesses de dépôt, ont ensuite été déterminés à l'aide de caractérisations structurales réalisées par diffraction de rayons X. Ces caractérisations ont également permis de remarquer la présence de deux directions de croissance ($\langle 111 \rangle$ et $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$ non équivalentes) ou bien d'une dégénérescence de la chiralité cristalline. Les conditions de dépôt retenues pour la croissance de couches minces de FeGe B20 épitaixié sont les suivantes :

| | Pression Ar | Épaisseur | Vitesse de dépôt | Température |
|------|---------------------------|-------------|------------------|-------------|
| Fe | 5.9×10^{-3} mbar | 0.7 nm | 0.25 Å/s | 450 °C |
| FeGe | 5.9×10^{-3} mbar | 30 - 150 nm | 0.48 Å/s | 375 °C |

Les couches minces de FeGe B20 ainsi développées présentent des caractéristiques magnétiques intéressantes. Des mesures d'effet Hall topologique, très utilisées pour la détection de la phase de skyrmions, ont permis de confirmer la présence de cette phase dans nos couches minces. De plus, la valeur d'effet Hall topologique relevée atteint $0.34 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ à 245 K, plus élevée que les valeurs reportées dans la littérature pour les mêmes systèmes. Une fois la présence de la phase de skyrmions confirmée, nous avons caractérisé les différentes phases magnétiques des couches minces de FeGe B20 par d'autres techniques, nouvelles dans le domaine de la skyrmionique. La spectroscopie Mössbauer et la spectroscopie de muons, toutes deux sensibles à la distribution locale des moments magnétiques, ont été étrennées sur nos couches minces. La spectroscopie Mössbauer a d'abord confirmé la température de transition magnétique de 280 K déterminée précédemment par effet Hall. Elle

a également révélé une direction de propagation des hélices magnétiques inattendue, à 20° de l'axe $\langle 111 \rangle$ du FeGe B20, orthogonal au plan de la couche. La spectroscopie de muons, malgré la modestie des mesures réalisées au cours de cette thèse, a tout de même montré un comportement magnétique inhabituel de nos couches minces de FeGe B20, en particulier la présence de corrélations magnétiques au-delà de la température de transition magnétique.

Il existe désormais plusieurs pistes à suivre afin d'approfondir nos connaissances sur ce système. Il serait par exemple intéressant de poursuivre les mesures d'effet Hall topologique en faisant varier les épaisseurs des couches minces de FeGe B20, afin d'éprouver la formation de skyrmions à champ nul. De plus, une observation de la dépendance de l'effet Hall topologique en fonction de la largeur des croix de Hall pourrait donner accès à la quantification de la contribution d'un skyrmion à la tension de Hall, et permettre d'entériner cette technique pour la détection de skyrmions dans des dispositifs industriels. Par ailleurs, les caractérisations de nos couches minces de FeGe B20 par spectroscopie Mössbauer sont toujours en cours à l'université de Rouen. Des mesures sous champ et à différentes températures sont prévues. Cela permettrait dans un premier temps d'établir un diagramme de phase détaillé de nos couches minces, mais également de préciser la distribution de directions des moments magnétiques, chose non réalisée dans la communauté scientifique jusqu'à présent. D'autre part, à plus long terme, la spectroscopie de muons devrait rendre possible la détermination de l'orientation exacte des moments magnétiques de chacune des phases magnétiques au sein du FeGe B20. Des mesures d'imagerie magnétique complèteraient les caractérisations magnétiques précédentes. La microscopie de Lorentz à basse température est *a priori* envisageable, sous la conduite d'Aurélien Maseboeuf au CEMES à Toulouse, et la microscopie à force magnétique à basse température devrait être disponible d'ici quelques mois à l'institut Néel à Grenoble*. Enfin, l'utilisation de différents substrats pour observer la variation des paramètres magnétiques, tels que la température de transition, avec la contrainte épitaxiale serait particulièrement intéressante.

Multicouches [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2]_n

Dans le cas du second système, les multicouches du type [métal lourd 1/ferromagnétique/métal lourd 2]_n, nous avons déterminé deux couples de métaux lourds qui, associés au Co comme matériau ferromagnétique, semblent prometteurs pour des applications à la spintronique. Les multicouches Ti(5 Å)/Au(50 Å)/[Au(10 Å)/Co(6-8 Å)/Pd(10 Å)]₁₀/Au(30 Å) présentent des caractéristiques intéressantes pour des expériences de transfert de spins. À rémanence et en pleine plaque, cette multicouche exhibe une texture magnétique en bulles d'environ 100 nm de diamètre, approchant de la taille requise pour la réalisation de mémoires denses ($1 \text{ Tbit/in}^2 \equiv 600 \text{ nm}^2/\text{bit}$). De plus, dans des nanofils de largeurs similaires à la taille des domaines magnétiques, ceux-ci se réagencent en domaines fins, parallèles les uns par rapport aux autres, et perpendiculaires aux fils, rappelant les *racetracks*. Cette texture magnétique, associée à des paramètres magnétiques comparables à ceux des multicouches [Co/Pt]_n (voir tableau 2.2), fait des multicouches [Au/Co/Pd]_n un excellent candidat pour des expériences de déplacement de parois ma-

*. Le développement d'un microscope à force magnétique à basse température est en cours, sous la direction d'Oliver Fruchart.

gnétiques. Le système actuel (avec des épaisseurs de métaux lourds fixées, et des rugosités d'interface de l'ordre de l'épaisseur de la couche de Co) ne présente aucun signe de l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) (les spectres de diffusion Brillouin n'affichent aucune asymétrie, et la microscopie de Lorentz montre des parois de Bloch).

| | M_{sat} (kA/m) | K_U (kJ/m ³) | B_c (mT) | ρ_{xx} ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$) | θ_{EHE} (%) |
|-------------------------|-------------------------|----------------------------|------------|---|---------------------------|
| Au/Co/Pd | 1400 | 1380 | 14.5 | 20 | 0.45 |
| Co/Pt [147, 149] | 1800 | 830 | 15 | 40 | ≤ 2 |
| Co/Ni [148, 164] | 680 | 380 | 240 | 18 | 0.3 |

Tab. 2.2 – Récapitulatif de quelques propriétés magnétiques et de transport des multicouches $[Au/Co/Pd]_n$ et comparaison avec des multicouches $[Co/Pt]_n$ et $[Co/Ni]_n$, très attractives pour des applications à la spintronique. M_{sat} est l'aimantation à saturation, K_U est l'anisotropie uniaxiale, B_c est le champ coercitif, ρ_{xx} est la résistivité et $\theta_{\text{EHE}} = \frac{\rho_{\text{EHE}}}{\rho_{xx}}$ est l'angle de Hall extraordinaire.

L'étude des multicouches $[Pt/Co/W]_n$ en est pour l'instant à un stade préliminaire. Mais les premières caractérisations magnétiques révèlent déjà le fort potentiel de ce système. Les cartographies d'imagerie magnétique et de cycles Kerr polaires réalisées sur un double coin d'épaisseur ont montré la présence de différents régimes magnétiques en fonction des épaisseurs de Co, de Pt et de W. Par exemple, pour des couches de Co suffisamment épaisses ($t_{\text{Co}} \geq 6 \text{ \AA}$) et des couches de Pt et W minces ($t_W, t_{\text{Pt}} \leq 8 \text{ \AA}$), la multicouche présente un comportement de ferromagnétique doux (coercitif et rémanence nuls), favorable au déplacement de parois par l'application d'un courant électrique faible, et une texture magnétique en domaines entrelacés étroits ($L = 70 - 150 \text{ nm}$) mêlés de bulles magnétiques. Ces propriétés font de ce système un candidat intéressant pour des applications à la spintronique. De plus, par une étude plus précise de quelques zones de la multicouche, nous avons extrait les paramètres magnétiques. Notamment, nous avons estimé la valeur de la constante de DMI, qui est comparable à celles des multicouches $[Ir/Co/Pt]_n$ et $[Pt/Co/Ta]_n$, très attractives pour des applications à la skyrmionique (voir tableau 2.3).

| | M_{sat} (kA/m) | $Q = \frac{K_U}{K_d}$ | L (nm) | σ_{DW} (mJ/m ²) | D_{eff} (mJ/m ²) |
|----------------------|-------------------------|-----------------------|----------|---|---------------------------------------|
| Au/Co/Pd | 1400 | 1.1 | 135 | 2.6 | 0.7 |
| Pt/Co/W 3 | 765 | 1.8 | 320 | 1.2 | 1.7 |
| Pt/Co/W 4 | 780 | 2.2 | 310 | 1.2 | 2.3 |
| Ir/Co/Pt [87] | 960 | 1.3 | 100 | 0.7 | 1.3 |
| Pt/Co/Ta [27] | 600 | 1.7 | 240 | 1.1 | 1.3 |

Tab. 2.3 – Récapitulatif de quelques propriétés magnétiques des multicouches $[Au/Co/Pd]_n$ et $[Pt/Co/W]_n$, et comparaison avec les multicouches $[Ir/Co/Pt]_n$ et $[Pt/Co/Ta]_n$. $Q = \frac{K_U}{K_d}$ est le facteur qualité, K_d est l'anisotropie dipolaire, L est la largeur des domaines magnétiques, σ_{DW} est la densité d'énergie de paroi et D_{eff} est la constante de DMI effective.

Avec le système actuel du double coin d'épaisseur, il serait possible d'exploiter les deux régimes magnétiques pour des expériences différentes. Par exemple, des expériences d'expansion de domaines magnétiques dans la zone 100 % rémanente permettrait de mesurer précisément la contribution de la DMI. À l'opposé, il serait intéressant de réaliser des mesures de magnéto-transport, en particulier d'effet Hall (l'effet Hall topologique n'a encore jamais été observé dans des systèmes en multicouche) dans la zone non rémanente et présentant des domaines magnétiques étroits. L'imagerie magnétique par microscopie de Lorentz permettrait d'autre part de déterminer la nature des parois de domaine (qui devraient être de type Néel si la DMI est suffisamment importante). Enfin, une étude systématique des paramètres magnétiques des multicouches en fonction des épaisseurs de Co et de métaux lourds, mais aussi de la rugosité des interfaces (la rugosité de nos multicouches est proche de l'épaisseur de Co), permettrait d'élaborer un système optimal pour des applications à la spintronique basée sur la DMI.

Bibliographie

- [1] M. BAIBICH, J. BROTO, A. FERT, F. VAN DAU, F. PETROFF, P. ETIENNE, G. CREUZET, A. FRIEDERICH et J. CHAZELAS, « Giant magnetoresistance of (001) Fe/(001) Cr magnetic superlattices », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 61, no. 21, p. 2472, 1988.
- [2] G. BINASCH, P. GRÜNBERG, F. SAURENBACH et W. ZINN, « Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange », *Phys. Rev. B*, vol. 39, no. 7, p. 4828, 1989.
- [3] M. JULLIERE, « Tunneling between ferromagnetic films », *Phys. Lett. A*, vol. 54, no. 3, p. 225–226, 1975.
- [4] J. MOODERA, L. KINDER, T. WONG et R. MESERVEY, « Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 74, no. 16, p. 3273, 1995.
- [5] J. SLONCZEWSKI, « Current-driven excitation of magnetic multilayers », *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 159, no. 1-2, p. L1–L7, 1996.
- [6] L. BERGER, « Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current », *Phys. Rev. B*, vol. 54, no. 13, p. 9353, 1996.
- [7] M. TSOI, A. JANSEN, J. BASS, W.-C. CHIANG, M. SECK, V. TSOI et P. WYDER, « Excitation of a magnetic multilayer by an electric current », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 80, no. 19, p. 4281, 1998.
- [8] E. MYERS, D. RALPH, J. KATINE, R. LOUIE et R. BUHRMAN, « Current-induced switching of domains in magnetic multilayer devices », *Science*, vol. 285, no. 5429, p. 867–870, 1999.
- [9] J. GROLLIER, P. BOULENC, V. CROS, A. HAMZIĆ, A. VAURES, A. FERT et G. FAINI, « Switching a spin valve back and forth by current-induced domain wall motion », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, no. 3, p. 509–511, 2003.
- [10] M. TSOI, R. FONTANA et S. PARKIN, « Magnetic domain wall motion triggered by an electric current », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, no. 13, p. 2617–2619, 2003.
- [11] G. BEACH, C. NISTOR, C. KNUTSON, M. TSOI et J. ERSKINE, « Dynamics of field-driven domain-wall propagation in ferromagnetic nanowires », *Nat. Mater.*, vol. 4, no. 10, p. 741, 2005.
- [12] M. HAYASHI, L. THOMAS, C. RETTNER, R. MORIYA et S. PARKIN, « Direct observation of the coherent precession of magnetic domain walls propagating along permalloy nanowires », *Nat. Phys.*, vol. 3, no. 1, p. 21–25, 2007.
- [13] S. PARKIN, M. HAYASHI et L. THOMAS, « Magnetic domain-wall racetrack memory », *Science*, vol. 320, no. 5873, p. 190–194, 2008.

- [14] T. H. R. SKYRME, « A unified field theory of mesons and baryons », *Nucl. Phys.*, vol. 31, p. 556–569, 1962.
- [15] J. SAMPAIO, V. CROS, S. ROHART, A. THIAVILLE et A. FERT, « Nucleation, stability and current-induced motion of isolated magnetic skyrmions in nanostructures », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 11, p. 839–844, 2013.
- [16] S. ROHART, J. MILTAT et A. THIAVILLE, « Path to collapse for an isolated Néel skyrmion », *Phys. Rev. B*, vol. 93, no. 21, p. 214412, 2016.
- [17] D. CORTÉS-ORTUÑO, W. WANG, M. BEG, R. A. PEPPER, M.-A. BISOTTI, R. CAREY, M. VOUSDEN, T. KLUYVER, O. HOVORKA et H. FANGOHR, « Thermal stability and topological protection of skyrmions in nanotracks », *Sci. Rep.*, vol. 7, 2017.
- [18] S. MÜHLBAUER, B. BINZ, F. JONIETZ, C. PFLEIDERER, A. ROSCH, A. NEUBAUER, R. GEORGII et P. BÖNI, « Skyrmion lattice in a chiral magnet », *Science*, vol. 323, no. 5916, p. 915–919, 2009.
- [19] A. NEUBAUER, C. PFLEIDERER, B. BINZ, A. ROSCH, R. RITZ, P. NIKLOWITZ et P. BÖNI, « Topological Hall effect in the A phase of MnSi », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, no. 18, p. 186602, 2009.
- [20] C. PAPPAS, E. LELIEVRE-BERNA, P. FALUS, P. BENTLEY, E. MOSKVIN, S. GRIGORIEV, P. FOUQUET et B. FARAGO, « Chiral paramagnetic skyrmion-like phase in MnSi », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, no. 19, p. 197202, 2009.
- [21] S. HEINZE, K. von BERGMANN, M. MENZEL, J. BREDE, A. KUBETZKA, R. WIESENDANGER, G. BIHLMAYER et S. BLÜGEL, « Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions », *Nat. Phys.*, vol. 7, no. 9, p. 713–718, 2011.
- [22] T. MORIYA, « Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism », *Phys. Rev.*, vol. 120, no. 1, p. 91, 1960.
- [23] A. CRÉPIEUX et C. LACROIX, « Dzyaloshinsky–Moriya interactions induced by symmetry breaking at a surface », *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 182, no. 3, p. 341–349, 1998.
- [24] F. JONIETZ, S. MÜHLBAUER, C. PFLEIDERER, A. NEUBAUER, W. MÜNZER, A. BAUER, T. ADAMS, R. GEORGII, P. BÖNI, R. DUINE *et al.*, « Spin transfer torques in MnSi at ultralow current densities », *Science*, vol. 330, no. 6011, p. 1648–1651, 2010.
- [25] X. YU, N. KANAZAWA, W. ZHANG, T. NAGAI, T. HARA, K. KIMOTO, Y. MATSUI, Y. ONOSE et Y. TOKURA, « Skyrmion flow near room temperature in an ultralow current density », *Nat. Commun.*, vol. 3, p. 988, 2012.
- [26] W. JIANG, P. UPADHYAYA, W. ZHANG, G. YU, M. JUNGFLAISCH, F. FRADIN, J. PEARSON, Y. TSERKOVNYAK, K. WANG, O. HEINONEN *et al.*, « Blowing magnetic skyrmion bubbles », *Science*, vol. 349, no. 6245, p. 283–286, 2015.
- [27] S. WOO, K. LITZIUS, B. KRÜGER, M. IM, L. CARETTA, K. RICHTER, M. MANN, A. KRONE, R. REEVE, M. WEIGAND *et al.*, « Observation of room-temperature magnetic skyrmions and their current-driven dynamics in ultrathin metallic ferromagnets », *Nat. Mater.*, 2016.

- [28] A. THIAVILLE, S. ROHART, É. JUÉ, V. CROS et A. FERT, « Dynamics of Dzyaloshinskii domain walls in ultrathin magnetic films », *Europhys. Lett.*, vol. 100, no. 5, p. 57002, 2012.
- [29] N. ROMMING, C. HANNEKEN, M. MENZEL, J. BICKEL, B. WOLTER, K. von BERGMANN, A. KUBETZKA et R. WIESENDANGER, « Writing and deleting single magnetic skyrmions », *Science*, vol. 341, no. 6146, p. 636–639, 2013.
- [30] M. FINAZZI, M. SAVOINI, A. KHORSAND, A. TSUKAMOTO, A. ITOH, L. DUÒ, A. KIRILYUK, T. RASING et M. EZAWA, « Laser-induced magnetic nanostructures with tunable topological properties », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 17, p. 177205, 2013.
- [31] Y. ZHOU et M. EZAWA, « A reversible conversion between a skyrmion and a domain-wall pair in a junction geometry », *Nat. Commun.*, vol. 5, 2014.
- [32] J. IWASAKI, M. MOCHIZUKI et N. NAGAOSA, « Current-induced skyrmion dynamics in constricted geometries », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 10, p. 742–747, 2013.
- [33] M. SCHOTT, A. BERNAND-MANTEL, L. RANNO, S. PIZZINI, J. VOGEL, H. BÉA, C. BARADUC, S. AUFFRET, G. GAUDIN et D. GIVORD, « The skyrmion switch : turning magnetic skyrmion bubbles on and off with an electric field », *Nano Lett.*, vol. 17, no. 5, p. 3006–3012, 2017.
- [34] P. HSU, A. KUBETZKA, A. FINCO, N. ROMMING, K. von BERGMANN et R. WIESENDANGER, « Electric-field-driven switching of individual magnetic skyrmions », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 12, no. 2, p. 123–126, 2017.
- [35] N. NAGAOSA, J. SINOVA, S. ONODA, A. MACDONALD et N. ONG, « Anomalous Hall effect », *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, no. 2, p. 1539, 2010.
- [36] C. HANNEKEN, F. OTTE, A. KUBETZKA, B. DUPE, N. ROMMING, K. von BERGMANN, R. WIESENDANGER, S. HEINZE *et al.*, « Electrical detection of magnetic skyrmions by tunnelling non-collinear magnetoresistance », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 10, no. 12, p. 1039–1039, 2015.
- [37] N. NAGAOSA et Y. TOKURA, « Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 12, p. 899–911, 2013.
- [38] N. KANAZAWA, M. KUBOTA, A. TSUKAZAKI, Y. KOZUKA, K. TAKAHASHI, M. KAWASAKI, M. ICHIKAWA, F. KAGAWA et Y. TOKURA, « Discretized topological Hall effect emerging from skyrmions in constricted geometry », *Phys. Rev. B*, vol. 91, no. 4, p. 041122, 2015.
- [39] A. FERT, V. CROS et J. SAMPAIO, « Skyrmions on the track », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 3, p. 152–156, 2013.
- [40] X. ZHANG, M. EZAWA et Y. ZHOU, « Magnetic skyrmion logic gates : conversion, duplication and merging of skyrmions », *Sci. Rep.*, vol. 5, 2015.
- [41] W. KANG, C. ZHENG, Y. HUANG, X. ZHANG, W. LV, Y. ZHOU et W. ZHAO, « Compact modeling and evaluation of magnetic skyrmion-based racetrack memory », *IEEE Trans. Electron. Devices*, vol. 64, no. 3, p. 1060–1068, 2017.
- [42] I. DZYALOSHINSKY, « A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of anti-ferromagnetics », *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 4, no. 4, p. 241–255, 1958.

- [43] I. DZYALOSHINSKII, « Theory of helicoidal structures in antiferromagnets. 1. non-metals », *Sov. Phys. JETP*, vol. 19, p. 960–971, 1964.
- [44] P. BAK et M. H. JENSEN, « Theory of helical magnetic structures and phase transitions in MnSi and FeGe », *J. Phys. C*, vol. 13, no. 31, p. L881, 1980.
- [45] A. BOGDANOV et D. YABLONSKII, « Thermodynamically stable "vortices" in magnetically ordered crystals. the mixed state of magnets », *JETP*, vol. 68, no. 1, p. 101, 1989.
- [46] A. FERT, « Magnetic and transport properties of metallic multilayers », in *Mater. Sci. Forum*, vol. 59, p. 439–480, Trans Tech Publ, 1990.
- [47] A. BOGDANOV et U. RÖSSLER, « Chiral symmetry breaking in magnetic thin films and multilayers », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, no. 3, p. 037203, 2001.
- [48] X. YU, M. MOSTOVOY, Y. TOKUNAGA, W. ZHANG, K. KIMOTO, Y. MATSUI, Y. KANEKO, N. NAGAOSA et Y. TOKURA, « Magnetic stripes and skyrmions with helicity reversals », *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 109, no. 23, p. 8856–8860, 2012.
- [49] T. OKUBO, S. CHUNG et H. KAWAMURA, « Multiple-q states and the skyrmion lattice of the triangular-lattice Heisenberg antiferromagnet under magnetic fields », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 1, p. 017206, 2012.
- [50] A. LEONOV et M. MOSTOVOY, « Multiply periodic states and isolated skyrmions in an anisotropic frustrated magnet », *Nat. Commun.*, vol. 6, p. 8275, 2015.
- [51] I. KÉZSMÁRKI, S. BORDÁCS, P. MILDE, E. NEUBER, L. ENG, J. WHITE, H. M. RØNNOW, C. DEWHURST, M. MOCHIZUKI, K. YANAI *et al.*, « Néel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV₄S₈ », *Nat. Mater.*, vol. 14, no. 11, p. 1116–1122, 2015.
- [52] S. MEYNELL, M. WILSON, J. LOUDON, A. SPITZIG, F. RYBAKOV, M. JOHNSON et T. MONCHESKY, « Hall effect and transmission electron microscopy of epitaxial MnSi thin films », *Phys. Rev. B*, vol. 90, no. 22, p. 224419, 2014.
- [53] X. YU, Y. ONOSE, N. KANAZAWA, J. PARK, J. HAN, Y. MATSUI, N. NAGAOSA et Y. TOKURA, « Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal », *Nature*, vol. 465, no. 7300, p. 901–904, 2010.
- [54] S. GRIGORIEV, D. CHERNYSHOV, V. DYADKIN, V. DMITRIEV, S. MALEYEV, E. MOSKVIN, D. MENZEL, J. SCHOENES et H. ECKERLEBE, « Crystal handedness and spin helix chirality in Fe_{1-x}Co_xSi », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, no. 3, p. 037204, 2009.
- [55] S. SEKI, X. YU, S. ISHIWATA et Y. TOKURA, « Observation of skyrmions in a multiferroic material », *Science*, vol. 336, no. 6078, p. 198–201, 2012.
- [56] Y. TOKUNAGA, X. YU, J. WHITE, H. M. RØNNOW, D. MORIKAWA, Y. TAGUCHI et Y. TOKURA, « A new class of chiral materials hosting magnetic skyrmions beyond room temperature », *Nat. Commun.*, vol. 6, 2015.
- [57] X. YU, N. KANAZAWA, Y. ONOSE, K. KIMOTO, W. ZHANG, S. ISHIWATA, Y. MATSUI et Y. TOKURA, « Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe », *Nat. Mater.*, vol. 10, no. 2, p. 106–109, 2011.
- [58] N. KANAZAWA, Y. ONOSE, T. ARIMA, D. OKUYAMA, K. OHYAMA, S. WAKIMOTO, K. KAKURAI, S. ISHIWATA et Y. TOKURA, « Large topological Hall effect

- in a short-period helimagnet MnGe », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 106, no. 15, p. 156603, 2011.
- [59] N. KANAZAWA, J.-H. KIM, D. INOSOV, J. WHITE, N. EGETENMEYER, J. GAVILANO, S. ISHIWATA, Y. ONOSE, T. ARIMA, B. KEIMER *et al.*, « Possible skyrmion-lattice ground state in the B20 chiral-lattice magnet MnGe as seen via small-angle neutron scattering », *Phys. Rev. B*, vol. 86, no. 13, p. 134425, 2012.
- [60] W. MÜNZER, A. NEUBAUER, T. ADAMS, S. MÜHLBAUER, C. FRANZ, F. JONIETZ, R. GEORGII, P. BÖNI, B. PEDERSEN, M. SCHMIDT *et al.*, « Skyrmion lattice in the doped semiconductor $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ », *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 4, p. 041203, 2010.
- [61] S. GRIGORIEV, V. DYADKIN, E. MOSKVIN, D. LAMAGO, T. WOLF, H. ECKERLEBE et S. MALEYEV, « Helical spin structure of $\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y\text{Si}$ under a magnetic field : Small angle neutron diffraction study », *Phys. Rev. B*, vol. 79, no. 14, p. 144417, 2009.
- [62] S. GRIGORIEV, N. POTAPOVA, S.-A. SIEGFRIED, V. DYADKIN, E. MOSKVIN, V. DMITRIEV, D. MENZEL, C. DEWHURST, D. CHERNYSHOV, R. SADYKOV *et al.*, « Chiral properties of structure and magnetism in $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$ compounds : When the left and the right are fighting, who wins ? », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 20, p. 207201, 2013.
- [63] K. SHIBATA, X. YU, T. HARA, D. MORIKAWA, N. KANAZAWA, K. KIMOTO, S. ISHIWATA, Y. MATSUI et Y. TOKURA, « Towards control of the size and helicity of skyrmions in helimagnetic alloys by spin-orbit coupling », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 10, p. 723–728, 2013.
- [64] A. BAUER, A. NEUBAUER, C. FRANZ, W. MÜNZER, M. GARST et C. PFLEIDERER, « Quantum phase transitions in single-crystal $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ and $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$: Crystal growth, magnetization, ac susceptibility, and specific heat », *Phys. Rev. B*, vol. 82, no. 6, p. 064404, 2010.
- [65] T. ADAMS, A. CHACON, M. WAGNER, A. BAUER, G. BRANDL, B. PEDERSEN, H. BERGER, P. LEMMENS et C. PFLEIDERER, « Long-wavelength helimagnetic order and skyrmion lattice phase in Cu_2OSeO_3 », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 23, p. 237204, 2012.
- [66] H. WU, K. CHANDRASEKHAR, T. WEI, K. HSIEH, T. CHEN, H. BERGER et H. YANG, « Physical pressure and chemical expansion effects on the skyrmion phase in Cu_2OSeO_3 », *J. Phys. D*, vol. 48, no. 47, p. 475001, 2015.
- [67] R. RITZ, M. HALDER, C. FRANZ, A. BAUER, M. WAGNER, R. BAMLER, A. ROSCH et C. PFLEIDERER, « Giant generic topological Hall resistivity of MnSi under pressure », *Phys. Rev. B*, vol. 87, no. 13, p. 134424, 2013.
- [68] A. BUTENKO, A. LEONOV, U. RÖSSLER et A. BOGDANOV, « Stabilization of skyrmion textures by uniaxial distortions in noncentrosymmetric cubic helimagnets », *Phys. Rev. B*, vol. 82, no. 5, p. 052403, 2010.
- [69] A. CHACON, A. BAUER, T. ADAMS, F. RUCKER, G. BRANDL, R. GEORGII, M. GARST et C. PFLEIDERER, « Uniaxial pressure dependence of magnetic order in MnSi », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, no. 26, p. 267202, 2015.
- [70] Y. NII, T. NAKAJIMA, A. KIKKAWA, Y. YAMASAKI, K. OHISHI, J. SUZUKI, Y. TAGUCHI, T. ARIMA, Y. TOKURA et Y. IWASA, « Uniaxial stress control of skyrmion phase », *Nat. Commun.*, vol. 6, p. 8539, 2015.

- [71] A. TONOMURA, X. YU, K. YANAGISAWA, T. MATSUDA, Y. ONOSE, N. KANAZAWA, H. PARK et Y. TOKURA, « Real-space observation of skyrmion lattice in helimagnet MnSi thin samples », *Nano Lett.*, vol. 12, no. 3, p. 1673–1677, 2012.
- [72] P. SINHA, N. PORTER et C. MARROWS, « Strain-induced effects on the magnetic and electronic properties of epitaxial $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ thin films », *Phys. Rev. B*, vol. 89, no. 13, p. 134426, 2014.
- [73] M. WILSON, A. BUTENKO, A. BOGDANOV et T. MONCHESKY, « Chiral skyrmions in cubic helimagnet films : The role of uniaxial anisotropy », *Phys. Rev. B*, vol. 89, no. 9, p. 094411, 2014.
- [74] S. HUANG et C. CHIEN, « Extended skyrmion phase in epitaxial FeGe (111) thin films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 26, p. 267201, 2012.
- [75] S. ZHANG, I. STASINOPOULOS, T. LANCASTER, F. XIAO, A. BAUER, F. RUCKER, A. BAKER, A. FIGUEROA, Z. SALMAN, F. PRATT *et al.*, « Room-temperature helimagnetism in FeGe thin films », *Sci. Rep.*, vol. 7, 2017.
- [76] J. GALLAGHER, K. MENG, J. BRANGHAM, H. WANG, B. ESSER, D. MCCOMB et F. YANG, « Robust zero-field skyrmion formation in FeGe epitaxial thin films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 118, no. 2, p. 027201, 2017.
- [77] M. BODE, M. HEIDE, K. VON BERGMANN, P. FERRIANI, S. HEINZE, G. BIHLMAYER, A. KUBETZKA, O. PIETZSCH, S. BLÜGEL et R. WIESENDANGER, « Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry », *Nature*, vol. 447, no. 7141, p. 190–193, 2007.
- [78] N. KISELEV, A. BOGDANOV, R. SCHÄFER et U. RÖSSLER, « Chiral skyrmions in thin magnetic films : new objects for magnetic storage technologies ? », *J. Phys. D*, vol. 44, no. 39, p. 392001, 2011.
- [79] S. ROHART et A. THIAVILLE, « Skyrmion confinement in ultrathin film nanostructures in the presence of Dzyaloshinskii-Moriya interaction », *Phys. Rev. B*, vol. 88, no. 18, p. 184422, 2013.
- [80] M. HEIDE, G. BIHLMAYER et S. BLÜGEL, « Dzyaloshinskii-Moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films : Fe/W (110) », *Phys. Rev. B*, vol. 78, no. 14, p. 140403, 2008.
- [81] A. YAMAGUCHI, T. ONO, S. NASU, K. MIYAKE, K. MIBU et T. SHINJO, « Real-space observation of current-driven domain wall motion in submicron magnetic wires », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 92, no. 7, p. 077205, 2004.
- [82] A. THIAVILLE, Y. NAKATANI, J. MILTAT et Y. SUZUKI, « Micromagnetic understanding of current-driven domain wall motion in patterned nanowires », *Europhys. Lett.*, vol. 69, no. 6, p. 990, 2005.
- [83] A. KHVALKOVSKIY, V. CROS, D. APALKOV, V. NIKITIN, M. KROUNBI, K. ZVEZDIN, A. ANANE, J. GROLLIER et A. FERT, « Matching domain-wall configuration and spin-orbit torques for efficient domain-wall motion », *Phys. Rev. B*, vol. 87, no. 2, p. 020402, 2013.
- [84] S. EMORI, U. BAUER, S. AHN, E. MARTINEZ et G. BEACH, « Current-driven dynamics of chiral ferromagnetic domain walls », *Nat. Mater.*, vol. 12, no. 7, p. 611–616, 2013.

- [85] G. CHEN, A. MASCARAQUE, A. N'DIAYE et A. SCHMID, « Room temperature skyrmion ground state stabilized through interlayer exchange coupling », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 106, no. 24, p. 242404, 2015.
- [86] O. BOULLE, J. VOGEL, H. YANG, S. PIZZINI, D. de SOUZA CHAVES, A. LOCATELLI, T. MENTES, A. SALA, L. BUDA-PREJBEANU, O. KLEIN *et al.*, « Room-temperature chiral magnetic skyrmions in ultrathin magnetic nanostructures », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 11, no. 5, p. 449–454, 2016.
- [87] C. MOREAU-LUCHAIRE, C. MOUTAFIS, N. REYREN, J. SAMPAIO, C. VAZ, N. VAN HORNE, K. BOUZEHOANE, K. GARCIA, C. DERANLOT, P. WARNICKE *et al.*, « Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature », *Nat. Nanotechnol.*, vol. 11, no. 5, p. 444–448, 2016.
- [88] G. CHEN, T. MA, A. N'DIAYE, H. KWON, C. WON, Y. WU, A. SCHMID *et al.*, « Tailoring the chirality of magnetic domain walls by interface engineering », *Nat. Commun.*, vol. 4, 2013.
- [89] A. HRABEC, N. PORTER, A. WELLS, M. BENITEZ, G. BURNELL, S. MCVITIE, D. MCGROUTHER, T. MOORE et C. MARROWS, « Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films », *Phys. Rev. B*, vol. 90, no. 2, p. 020402, 2014.
- [90] B. DUPÉ, G. BIHLMAYER, M. BÖTTCHER, S. BLÜGEL et S. HEINZE, « Engineering skyrmions in transition-metal multilayers for spintronics », *Nat. Commun.*, vol. 7, 2016.
- [91] A. SOUMYANARAYANAN, M. RAJU, A. OYARCE, A. TAN, M. IM, A. PETROVIĆ, P. HO, K. KHOO, M. TRAN, C. GAN *et al.*, « Tunable room-temperature magnetic skyrmions in Ir/Fe/Co/Pt multilayers », *Nat. Mater.*, vol. 16, no. 9, p. 898, 2017.
- [92] M. JOHNSON, P. BLOEMEN, F. DEN BROEDER et J. DE VRIES, « Magnetic anisotropy in metallic multilayers », *Rep. Prog. Phys.*, vol. 59, no. 11, p. 1409, 1996.
- [93] P. SIGMUND, « Theory of sputtering. i. sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets », *Phys. Rev.*, vol. 184, no. 2, p. 383, 1969.
- [94] R. POWELL et S. ROSSNAGEL, « Chapter 2 physics of sputtering », in *PVD for Microelectronics : Sputter Deposition Applied to Semiconductor Manufacturing*, vol. 26 in *Thin Films*, p. 23 – 49, Elsevier, 1999.
- [95] M. BJÖRCK et G. ANDERSSON, « Genx : an extensible X-ray reflectivity refinement program utilizing differential evolution », *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 40, no. 6, p. 1174–1178, 2007.
- [96] A. PATTERSON, « The Scherrer formula for X-ray particle size determination », *Phys. Rev.*, vol. 56, no. 10, p. 978, 1939.
- [97] M. RICHARDSON, « The partial equilibrium diagram of the Fe-Ge system in the range 40–72 at.% Ge, and the crystallisation of some iron germanides by chemical transport reactions », *Acta Chem. Scand.*, vol. 21, no. 9, 1967.
- [98] O. KUBASCHEWSKI, *Iron—Binary phase diagrams*. Springer Science & Business Media, 2013.

- [99] N. PORTER, J. GARTSIDE et C. MARROWS, « Scattering mechanisms in textured FeGe thin films : Magnetoresistance and the anomalous Hall effect », *Phys. Rev. B*, vol. 90, no. 2, p. 024403, 2014.
- [100] G. FELCHER et J. JORGENSEN, « Magnetic structures of monoclinic FeGe », *J. Phys. C*, vol. 16, no. 32, p. 6281, 1983.
- [101] O. NDWANDWE, *Phase formation sequence at metal-Germanium interfaces in thin film systems*. Thèse doctorat, Department of Physics, University of Zululand, 1996.
- [102] B. MATSUKURA, Y. HIRAIWA, T. NAKAJIMA, K. NARUMI, S. SAKAI, T. SADOH, M. MIYAO et Y. MAEDA, « Self organization of FeGe/FeSi/FeGe layered structures on Ge and their electrical conduction properties », *Phys. Proc.*, vol. 23, p. 21–24, 2012.
- [103] R. JAAFAR, D. BERLING, D. SÉBILLEAU et G. GARREAU, « Epitaxial Fe-Ge thin films on Ge (111) : Morphology, structure, and magnetic properties versus stoichiometry », *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 15, p. 155423, 2010.
- [104] J. CHARIG et D. SKINNER, « Carbon contamination of Si (111) surfaces », *Surface Sci.*, vol. 15, no. 2, p. 277–285, 1969.
- [105] H. HIRAYAMA, T. TATSUMI et N. AIZAKI, « Reflection high energy electron diffraction and Auger electron spectroscopic study on B/Si (111) surfaces », *Surface Sci.*, vol. 193, no. 1-2, p. L47–L52, 1988.
- [106] J. CHEVRIER, J. DERRIEN *et al.*, « Epitaxial growth of Fe-Si compounds on the silicon (111) face », *Phys. Rev. B*, vol. 46, no. 24, p. 15946, 1992.
- [107] F. DEN BROEDER, D. KUIPER, A. Van de MOSSELAER et W. HOVING, « Perpendicular magnetic anisotropy of Co-Au multilayers induced by interface sharpening », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 60, no. 26, p. 2769, 1988.
- [108] P. CARCIA, Z. LI et W. ZEPER, « Effect of sputter-deposition processes on the microstructure and magnetic properties of Pt/Co multilayers », *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 121, no. 1-3, p. 452–460, 1993.
- [109] J. CHO, N. KIM, S. LEE, J. KIM, R. LAVRIJSEN, A. SOLIGNAC, Y. YIN, D. HAN, N. VAN HOOF, H. SWAGTEN *et al.*, « Thickness dependence of the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in inversion symmetry broken systems », *Nat. Commun.*, vol. 6, 2015.
- [110] H. YANG, A. THIAVILLE, S. ROHART, A. FERT et M. CHSHIEV, « Anatomy of Dzyaloshinskii-Moriya interaction at Co/Pt interfaces », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, no. 26, p. 267210, 2015.
- [111] P. CARCIA, « Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co and Pt/Co thin-film layered structures », *J. Appl. Phys.*, vol. 63, no. 10, p. 5066–5073, 1988.
- [112] P. LACZKOWSKI, Y. FU, H. YANG, J.-C. ROJAS-SÁNCHEZ, P. NOEL, V. PHAM, G. ZAHND, C. DERANLOT, S. COLLIN, C. BOUARD *et al.*, « Large enhancement of the spin Hall effect in Au by side-jump scattering on Ta impurities », *Phys. Rev. B*, vol. 96, no. 14, p. 140405, 2017.
- [113] A. SUKSTANSKII et K. PRIMAK, « Domain structure in an ultrathin ferromagnetic film », *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 169, no. 1-2, p. 31–38, 1997.

-
- [114] V. GEHANNO, R. HOFFMANN, Y. SAMSON, A. MARTY et S. AUFFRET, « In plane to out of plane magnetic reorientation transition in partially ordered FePd thin films », *Eur. Phys. J. B*, vol. 10, no. 3, p. 457–464, 1999.
- [115] M. PIECUCH et L. NEVOT, « X-ray and neutron characterization of multilayer systems », in *Mater. Sci. Forum*, vol. 59, p. 93–140, Trans Tech Publ, 1990.
- [116] A. DUSSAUX, P. SCHOENHERR, K. KOUMPOURAS, J. CHICO, K. CHANG, L. LORENZELLI, N. KANAZAWA, Y. TOKURA, M. GARST, A. BERGMAN *et al.*, « Local dynamics of topological magnetic defects in the itinerant helimagnet FeGe », *Nat. Commun.*, vol. 7, p. 12430, 2016.
- [117] J. CHAPMAN, « The investigation of magnetic domain structures in thin foils by electron microscopy », *J. Phys. D*, vol. 17, no. 4, p. 623, 1984.
- [118] M. R. TEAGUE, « Deterministic phase retrieval : a Green's function solution », *JOSA*, vol. 73, no. 11, p. 1434–1441, 1983.
- [119] M. BENITEZ, A. HRABEC, A. MIHAI, T. MOORE, G. BURNELL, D. MCGROUTHER, C. MARROWS et S. MCVITIE, « Magnetic microscopy and topological stability of homochiral néel domain walls in a Pt/Co/AlOx trilayer », *Nat. Commun.*, vol. 6, p. 8957, 2015.
- [120] M. KRAJNAK, D. MCGROUTHER, D. MANEUSKI, V. O'SHEA et S. MCVITIE, « Pixelated detectors and improved efficiency for magnetic imaging in STEM differential phase contrast », *Ultramicroscopy*, vol. 165, p. 42–50, 2016.
- [121] A. PETFORD-LONG et J. CHAPMAN, « Lorentz microscopy », in *Magnetic microscopy of nanostructures*, p. 67–86, Springer, 2005.
- [122] T. MCGUIRE et R. POTTER, « Anisotropic magnetoresistance in ferromagnetic 3d alloys », *IEEE Trans. Magn.*, vol. 11, no. 4, p. 1018–1038, 1975.
- [123] P. LEVY et S. ZHANG, « Resistivity due to domain wall scattering », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, no. 25, p. 5110, 1997.
- [124] M. VIRET, D. VIGNOLES, D. COLE, J. COEY, W. ALLEN, D. DANIEL et J. GREGG, « Spin scattering in ferromagnetic thin films », *Phys. Rev. B*, vol. 53, no. 13, p. 8464, 1996.
- [125] R. DANNEAU, P. WARIN, J. ATTANÉ, I. PETEJ, C. BEIGNÉ, C. FERMON, O. KLEIN, A. MARTY, F. OTT, Y. SAMSON *et al.*, « Individual domain wall resistance in submicron ferromagnetic structures », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 88, no. 15, p. 157201, 2002.
- [126] B. RAQUET, M. VIRET, E. SONDERGARD, O. CESPEDES et R. MAMY, « Electron-magnon scattering and magnetic resistivity in 3d ferromagnets », *Phys. Rev. B*, vol. 66, no. 2, p. 024433, 2002.
- [127] A. MIHAI, J. ATTANÉ, A. MARTY, P. WARIN et Y. SAMSON, « Electron-magnon diffusion and magnetization reversal detection in FePt thin films », *Phys. Rev. B*, vol. 77, no. 6, p. 060401, 2008.
- [128] V. NGUYEN, L. VILA, P. LACZKOWSKI, A. MARTY, T. FAIVRE et J. ATTANÉ, « Detection of domain-wall position and magnetization reversal in nanostructures using the magnon contribution to the resistivity », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, no. 13, p. 136605, 2011.

- [129] P. BRUNO, V. DUGAEV et M. TAILLEFUMIER, « Topological Hall effect and Berry phase in magnetic nanostructures », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, no. 9, p. 096806, 2004.
- [130] C. PFLEIDERER et A. ROSCH, « Condensed-matter physics : Single skyrmions spotted », *Nature*, vol. 465, no. 7300, p. 880–881, 2010.
- [131] H. YAMADA, K. TERAOKA, H. OHTA et E. KULATOV, « Electronic structure and magnetism of FeGe with B20-type structure », *Phys. B*, vol. 329, p. 1131–1133, 2003.
- [132] ROYAL SOCIETY OF CHEMISTRY, « Introduction to Mössbauer spectroscopy ». <http://www.rsc.org/Membership/Networking/InterestGroups/MossbauerSpect/intro.asp>.
- [133] B. LEBECH, J. BERNHARD et T. FRELTOFT, « Magnetic structures of cubic FeGe studied by small-angle neutron scattering », *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 1, no. 35, p. 6105, 1989.
- [134] R. WÄPPLING et L. HÄGGSTRÖM, « Mössbauer study of cubic FeGe », *Phys. Lett. A*, vol. 28, no. 3, p. 173–174, 1968.
- [135] M. FANCIULLI, G. WEYER, H. VON KÄNEL et N. ONDA, « Conversion electron Mössbauer spectroscopy study of iron silicide films grown by MBE », *Phys. Scr.*, vol. 1994, no. T54, p. 16, 1994.
- [136] G. WERTHEIM, J. WERNICK et D. BUCHANAN, « Mössbauer effect in $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ », *J. Appl. Phys.*, vol. 37, no. 9, p. 3333–3337, 1966.
- [137] P. Dalmas de RÉOTIER, « Introduction to muon spin rotation and relaxation ». http://inac.cea.fr/Pisp/pierre.dalmas-de-reotier/introduction_muSR.pdf.
- [138] P. Dalmas de RÉOTIER, A. MAISURADZE, A. YAOUANC, B. ROESSLI, A. AMATO, D. ANDREICA et G. LAPERTOT, « Determination of the zero-field magnetic structure of the helimagnet MnSi at low temperature », *Phys. Rev. B*, vol. 93, no. 14, p. 144419, 2016.
- [139] P. Dalmas de RÉOTIER, A. MAISURADZE, A. YAOUANC, B. ROESSLI, A. AMATO, D. ANDREICA et G. LAPERTOT, « Unconventional magnetic order in the conical state of MnSi », *Phys. Rev. B*, vol. 95, no. 18, p. 180403, 2017.
- [140] T. LANCASTER, F. XIAO, Z. SALMAN, I. THOMAS, S. BLUNDELL, F. PRATT, S. CLARK, T. PROKSCHA, A. SUTER, S. ZHANG *et al.*, « Transverse field muon-spin rotation measurement of the topological anomaly in a thin film of MnSi », *Phys. Rev. B*, vol. 93, no. 14, p. 140412, 2016.
- [141] PAUL SCHERRER INSTITUTE, « Low energy muons : Overview of the experimental setup ». <https://www.psi.ch/low-energy-muons/experimental-setup>.
- [142] F. N. RYBAKOV, A. B. BORISOV, S. BLÜGEL et N. S. KISELEV, « New type of stable particlelike states in chiral magnets », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, no. 11, p. 117201, 2015.
- [143] F. ZHENG, F. RYBAKOV, A. BORISOV, D. SONG, S. WANG, Z. LI, H. DU, N. KISELEV, J. CARON, A. KOVÁCS *et al.*, « Experimental observation of magnetic bobbers for a new concept of magnetic solid-state memory », *arXiv preprint arXiv:1706.04654*, 2017.

- [144] A. AHMED, J. ROWLAND, B. ESSER, S. DUNSIGER, D. MCCOMB, M. RANDERIA et R. KAWAKAMI, « Chiral bobber formation in epitaxial FeGe/Si (111) films », *arXiv preprint arXiv:1706.08248*, 2017.
- [145] P. Dalmas de RÉOTIER, A. MAISURADZE, A. YAOUANC, B. ROESSLI, A. AMATO, D. ANDREICA et G. LAPERTOT. personal communication.
- [146] A. BAUER et C. PFLEIDERER, « Magnetic phase diagram of MnSi inferred from magnetization and ac susceptibility », *Phys. Rev. B*, vol. 85, no. 21, p. 214418, 2012.
- [147] C. CANEDY, X. LI et G. XIAO, « Large magnetic moment enhancement and extraordinary Hall effect in Co/Pt superlattices », *Phys. Rev. B*, vol. 62, no. 1, p. 508, 2000.
- [148] H. TANIGAWA, T. KOYAMA, G. YAMADA, D. CHIBA, S. KASAI, S. FUKAMI, T. SUZUKI, N. OHSHIMA, N. ISHIWATA, Y. NAKATANI *et al.*, « Domain wall motion induced by electric current in a perpendicularly magnetized Co/Ni nano-wire », *Appl. Phys. Express*, vol. 2, no. 5, p. 053002, 2009.
- [149] J. MORITZ, B. RODMACQ, S. AUFFRET et B. DIENY, « Extraordinary Hall effect in thin magnetic films and its potential for sensors, memories and magnetic logic applications », *J. Phys. D*, vol. 41, no. 13, p. 135001, 2008.
- [150] B. KAPLAN et G. GEHRING, « The domain structure in ultrathin magnetic films », *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 128, no. 1-2, p. 111–116, 1993.
- [151] V. GEHANNO, A. MARTY, B. GILLES et Y. SAMSON, « Magnetic domains in epitaxial ordered FePd (001) thin films with perpendicular magnetic anisotropy », *Phys. Rev. B*, vol. 55, no. 18, p. 12552, 1997.
- [152] J. ATTANÉ, M. TISSIER, A. MARTY et L. VILA, « Invasion percolation universality class and fractal geometry of magnetic domains », *Phys. Rev. B*, vol. 82, no. 2, p. 024408, 2010.
- [153] E. H. SONDHEIMER, « The mean free path of electrons in metals », *Advan. Phys.*, vol. 1, no. 1, p. 1–42, 1952.
- [154] J. ROWELL, « Artificially layered materials », in *AIP Conf. Proc.*, vol. 138, p. 74–79, AIP, 1986.
- [155] V. NGUYEN, C. NAYLOR, L. VILA, A. MARTY, P. LACZKOWSKI, C. BEIGNE, L. NOTIN, Z. ISHAQUE et J. ATTANE, « Magnon magnetoresistance of NiFe nanowires : Size dependence and domain wall detection », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 26, p. 262504, 2011.
- [156] J. ATTANE, D. RAVELOSONA, A. MARTY, V. NGUYEN et L. VILA, « Coercivity enhancement in FePt nanowires due to the suppression of available paths for domain wall propagation », *Phys. Rev. B*, vol. 84, no. 14, p. 144418, 2011.
- [157] K. ZAKERI, Y. ZHANG, J. PROKOP, T.-H. CHUANG, N. SAKR, W. TANG et J. KIRSCHNER, « Asymmetric spin-wave dispersion on Fe (110) : Direct evidence of the Dzyaloshinskii-Moriya interaction », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, no. 13, p. 137203, 2010.
- [158] A. STASHKEVICH, M. BELMEGUENAI, Y. ROUSSIGNÉ, S. CHERIF, M. KOSTYLEV, M. GABOR, D. LACOUR, C. TIUSAN et M. HEHN, « Experimental study of spin-wave

- dispersion in Py/Pt film structures in the presence of an interface Dzyaloshinskii-Moriya interaction », *Phys. Rev. B*, vol. 91, no. 21, p. 214409, 2015.
- [159] D. CORTÉS-ORTUÑO et P. LANDEROS, « Influence of the Dzyaloshinskii–Moriya interaction on the spin-wave spectra of thin films », *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 25, no. 15, p. 156001, 2013.
- [160] M. BELMEGUENAI, J. ADAM, Y. ROUSSIGNÉ, S. EIMER, T. DEVOLDER, J. KIM, S. CHERIF, A. STASHKEVICH et A. THIAVILLE, « Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized Pt/Co/AlOx ultrathin films measured by Brillouin light spectroscopy », *Phys. Rev. B*, vol. 91, no. 18, p. 180405, 2015.
- [161] K. DI, V. ZHANG, H. LIM, S. NG, M. KUOK, X. QIU et H. YANG, « Asymmetric spin-wave dispersion due to Dzyaloshinskii-Moriya interaction in an ultrathin Pt/CoFeB film », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 106, no. 5, p. 052403, 2015.
- [162] S. TACCHI, R. TRONCOSO, M. AHLBERG, G. GUBBIOTTI, M. MADAMI, J. ÅKERMAN et P. LANDEROS, « Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in Pt/CoFeB films : effect of the heavy-metal thickness », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 118, no. 14, p. 147201, 2017.
- [163] M. VAŇATKA, J. ROJAS-SÁNCHEZ, J. VOGEL, M. BONFIM, M. BELMEGUENAI, Y. ROUSSIGNÉ, A. STASHKEVICH, A. THIAVILLE et S. PIZZINI, « Velocity asymmetry of Dzyaloshinskii domain walls in the creep and flow regimes », *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 27, no. 32, p. 326002, 2015.
- [164] P. ZHANG, K. XIE, W. LIN, D. WU et H. SANG, « Anomalous Hall effect in Co/Ni multilayers with perpendicular magnetic anisotropy », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, no. 8, p. 082404, 2014.

Résumé

Les nouvelles technologies numériques sont très avides en capacité de stockage, ainsi qu'en efficacité de transport d'information. Les dispositifs d'aujourd'hui atteignant leurs limites, la recherche de nouvelles solutions de stockage est primordiale. Dans cette optique, un nouvel objet magnétique robuste et peu sensible aux perturbations extérieures a été découvert : le skyrmion. Il est récemment devenu un sujet d'étude très actif et a été observé expérimentalement dans deux types de systèmes. Le premier est basé sur les matériaux hélimagnétiques, dont la structure cristalline est non centrosymétrique. Le FeGe est l'un d'eux, avec la température de transition magnétique observée la plus élevée. Le skyrmion a également été observé à l'interface entre un métal lourd à fort couplage spin-orbite et un matériau ferromagnétique. En particulier, les systèmes de multicouches à interfaces non symétriques ont montré leurs forts potentiels pour la manipulation de skyrmions à température ambiante. Les deux principales difficultés rencontrées aujourd'hui sont la réalisation de ces systèmes avec des techniques d'élaboration intégrables à des dispositifs industriels, ainsi que la détection fiable de la présence de skyrmions.

Cette thèse est séparée en deux problématiques, appliquées aux deux types de systèmes. Un protocole de croissance de couches minces de FeGe hélimagnétique par pulvérisation cathodique a été développé en s'appuyant principalement sur des caractérisations structurales par diffraction de rayons X. L'élaboration de multicouches à interfaces non symétriques du type [métal lourd 1/matériau ferromagnétique/métal lourd 2]_n a également été étudiée. Ces deux systèmes ont ensuite été caractérisés magnétiquement par diverses techniques basées sur de l'imagerie magnétique, des mesures de magnéto-transport et de la spectroscopie magnétique.

Mots-clés : skyrmion, interaction de Dzyaloshinskii-Moriya (DMI), FeGe, multicouches, microscopie magnétique, magnéto-transport

Abstract

New technology needs huge storage capacity together with high speed and low-cost transport of information. Current devices meeting their limits, research on new storage solutions is needed. One of them, proposed a few years ago, consists in using magnetic domain walls. Aligning them in nanowires and using the thickness of the layers could enable the realization of a tridimensional recording device and then improve the storage capacity. A new object more robust and less sensitive to perturbations has been discovered since. Skyrmion is now widely studied. It has been experimentally observed in two kinds of systems. The first one is helimagnet, with non centrosymmetric crystal structure. FeGe is one of them, with the highest critical temperature observed yet. Skyrmion has been observed as well at the interface between a heavy metal with strong spin-orbit coupling and a ferromagnet. In particular, multilayers with non-symmetric interfaces are very promising systems for manipulation of skyrmions at room temperature. Nevertheless, the elaboration of systems for industrial devices and reliable detection of skyrmions is still challenging.

These two problematics are explored in this thesis, applied to two different systems. A protocol to grow helimagnetic FeGe thin films was first established, thanks to structural characterization mainly based on X-ray diffraction. Growth of multilayers with non symmetrical interfaces [heavy metal 1/ferromagnet/heavy metal 2]_n was studied as well. These systems were then magnetically characterized, using numerous techniques such as magnetic imaging, magneto-transport measurements and magnetic spectroscopy.

Key words : skyrmion, Dzyaloshinskii-Moriya interaction (DMI), FeGe, multilayers, magnetic microscopy, magneto-transport

