



HAL
open science

Etude expérimentale de la multifissuration et de la décohésion de films minces et nanostructures magnétiques sur substrats flexibles : effet sur l'anisotropie magnétique

Skander Merabtine

► **To cite this version:**

Skander Merabtine. Etude expérimentale de la multifissuration et de la décohésion de films minces et nanostructures magnétiques sur substrats flexibles : effet sur l'anisotropie magnétique. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université Sorbonne Paris Cité, 2017. Français. NNT : 2017US-PCD058 . tel-02290650

HAL Id: tel-02290650

<https://theses.hal.science/tel-02290650>

Submitted on 17 Sep 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Ecole doctorale Galilée

Doctorat de physique

Thèse

pour obtenir le grade de docteur délivré par

L'Université Paris 13

« Spécialité Sciences des matériaux »

présentée par

Skander Merabtine

soutenance prévue le 15 Décembre 2017

Etude expérimentale de la multifissuration et de la
décohésion de films minces et nanostructures
magnétiques sur substrats flexibles : effet sur
l'anisotropie magnétique

Jury :

M. Guillaume Parry	Rapporteur
M. Pierre-Olivier Renault	Rapporteur
M. Laurent Belliard	Président
M. Philippe Djemia	Examineur
M. Damien Faurie	Examineur
M. Fatih Zighem	Examineur

Université Paris 13

Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM)
UPR CNRS 3407, 99 avenue J. B. Clément, 93430 Villetaneuse, France

Ecole doctorale Galilée

Doctorat de physique

Thèse

pour obtenir le grade de docteur délivré par

L'Université Paris 13

« Spécialité Sciences des matériaux »

présentée par

Skander Merabtine

soutenance prévue le 15 Décembre 2017

Etude expérimentale de la multifissuration et de la
décohésion de films minces et nanostructures
magnétiques sur substrats flexibles : effet sur
l'anisotropie magnétique

Jury :

M. Guillaume Parry	Rapporteur
M. Pierre-Olivier Renault	Rapporteur
M. Laurent Belliard	Président
M. Philippe Djemia	Examineur
M. Damien Faurie	Examineur
M. Fatih Zighem	Examineur

Université Paris 13

Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM)
UPR CNRS 3407, 99 avenue J. B. Clément, 93430 Villetaneuse, France

Remerciements

Avant tout, je tiens à remercier les membres du jury, pour avoir accepté de porter leur regard critique sur ces travaux de thèse, le président du jury Laurent Belliard, ainsi que les rapporteurs Guillaume Parry et Pierre-Olivier Renault.

Je remercie mon directeur de thèse Philippe Djemia, ainsi que Damien Faurie et Fatih Zighem, de m'avoir non seulement accordé leur confiance, mais également de m'avoir apporté au travers de nos discussions formelles ou informelles, une réelle source de motivation. Ces derniers ont fait preuve d'une qualité humaine formidable, mais également d'un pragmatisme à toute épreuve, qui m'a permis d'aller au bout de ce travail.

Je remercie par ailleurs, toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à ce projet. A la fois, Alexis Garcia-Sanchez, ingénieur au LSPM, pour m'avoir formé et accompagné à mes débuts sur la microscopie à force atomique. Radhi Abdelmoula pour ses réponses aux questions liées à la mécanique de la rupture, mais également pour l'intérêt qu'il a porté au sujet. De même, je tiens à remercier les collaborateurs extérieurs, à savoir le professeur Adekunle Adeyeye de la NUS Singapour, ainsi que Vignesh Gunasekaran, étudiant du Master 2 « Physique et Sciences des Matériaux », qui a accompli son stage au sein de la NUS, pour l'élaboration des matériaux, m'ayant permis d'accomplir le travail expérimental nécessaire.

Par ailleurs, je tiens à remercier l'ensemble des membres de l'équipe FINANO pour leur aide à tout moment et au bel accueil qu'il m'ont fait. A savoir Fatiha Challali, Yves Roussigné, Mohamed Belmeguenai, Salim-Mourad Chérif, Silvana Mercone, Andrei Stachkevitch, Philippe Moch et Florent Tétard.

De même, je tiens à remercier le personnel enseignant ou administratif et mes étudiants de l'IUT de Saint-Denis et du département GIM « génie industriel et maintenance », que se soit pour leur accueil, pour leur compréhension et leurs accompagnements, j'ai passé des moments inoubliables en leurs compagnies.

Je remercie également le personnel du laboratoire, que se soit son directeur Khaled Hassouni, le personnel administratif, l'ensemble des ingénieurs ainsi que tous les chercheurs du laboratoire.

Je tiens à remercier l'ensemble des doctorants et ancien doctorant du laboratoire, à savoir Romain Savina, envers qui je n'ai pas oublié ce que je lui dois, je remercie également Tarik Sadat, Bermame Beucia, Mohamadou Gueye pour avoir facilité mon intégration au sein du laboratoire. Je remercie également Zakarya El Omari, Sarah Dine, Mine Er, Benoît Baudrillart, Abdelkader Rahmani, Quriaky Gomez Carrero, Catalina Quiros Lara, Annika Pille, Pauline Cnaud, Sabrine Ayadi, et ceux que je n'ai pas cité. De même, je tiens à remercier mes collègues de bureau, que j'ai eut pendant ces 3 années comme, Judith Bourguille, Li Chen-Hui et Bouloussa Hedi, ainsi que l'ensemble des stagiaires présents dans mon bureau au cours de ces 3 ans. Je remercie également Nabil Challab pour m'avoir soutenu moralement pendant les répétitions de ma soutenance, ainsi que pour son soutien sur d'autres plans. A ceux qui n'ont pas encore terminé leur doctorat, je leur souhaite un bon courage !

Je tiens à remercier tous mes amis, qui ont également été présents pour me reconforter volontairement ou non dans mes moments de doutes.

Enfin, je tiens à remercier mes parents, mon frère Yacine, ma belle soeur et toute ma famille, également Laifa Boufendi, de m'avoir accompagné et soutenu de manière indéfectible, même dans les moments où j'ai démontré un manque évident de maturité.

***A la mémoire de ma
grand-mère qui nous
a quittés***

Table des matières

Chapitre 1 : Introduction générale et motivations

1. L'électronique flexible et/ou étirable
 2. La magnéto-électronique flexible
 3. Objectifs de la thèse et organisation du manuscrit
-

Chapitre 2 : Fabrication des échantillons

1. Choix du substrat et des matériaux magnétiques
 2. Dépôt des films minces magnétiques par pulvérisation magnétron
 - 2.1 Principe général
 - 2.2 Elaboration des films minces sur substrat polymère
 3. Fabrication des réseaux de nanolignes
 4. Essais sur PDMS
-

Chapitre 3 : Méthodologies expérimentales

1. Essai de traction
 - 1.1. Description théorique de nos essais de traction
 - 1.1.1 Traction d'un film supporté en élasticité linéaire
 - 1.1.2 Au delà de l'élasticité linéaire : fissuration et décohésion des films minces
 - 1.2. Montage permettant l'étude in situ de l'apparition des fissures et des décohésions -
 - 1.2.1. Machine de traction et éprouvettes
 - 1.2.2. Suivi in situ par microscopie à forces atomiques
 - 1.2.3. Mesure in situ de la résistivité
 2. La résonance ferromagnétique
 - 2.1 Théorie du micromagnétisme
 - 2.1.1. Les différents termes d'énergies
 - 2.1.2. Dynamique de l'aimantation
 - 2.2 Aspect instrumental de la résonance ferromagnétique
 - 2.2.1. Principe de base
 - 2.2.2. Montage expérimental
 - 2.2.3. Focus sur la cellule d'excitation et la technique de modulation
-

Chapitre 4 : Multifissuration et décollements subséquents de films minces

1. Observation de la fissuration par imagerie AFM
 2. Analyse quantitative : densités et profondeurs des fissures
 3. Mesures de résistance électrique in situ – Etude de la fermeture des fissures
 4. Décollement des films minces
 5. Suivi individuel des cloques
 6. Essais de traction *ex situ*
 7. Etude annexe : vieillissement des fissures
-

Chapitre 5 : Etude des propriétés magnéto-mécaniques des films minces

1. Caractérisation magnétique de base
 2. Détermination du coefficient de magnétostriction
 3. Comportement magnétique en grandes déformations
-

Chapitre 6 : Déformation de nanolignes de Ni₈₀Fe₂₀ et Ni₆₀Fe₄₀ – Effet sur les propriétés magnétiques

1. Essai de traction *in situ*
 - 1.1. Images AFM
 - 1.2. Analyse quantitative
 2. Propriétés magnétiques et magnéto-mécaniques
 - 2.1. Propriétés magnétiques en absence de déformation
 - 2.2. Influence des grandes déformations
-

Chapitre 7 : Conclusions et Perspectives

1. Conclusions
2. Perspectives

Chapitre 1

Introduction générale et motivations

Sommaire

1. L'électronique flexible et/ou étirable
 2. La magnéto-électronique flexible
 3. Objectifs de la thèse et organisation du manuscrit
-

L'électronique flexible est porteuse d'immenses promesses liées à la fabrication de composants et de circuits électroniques à bas coût. Par des techniques d'impression, elle permettra notamment des développements importants dans le domaine des écrans souples, des étiquettes intelligentes ou du photovoltaïque. Son fort potentiel en termes d'innovation, vient notamment de la possibilité de réaliser des fonctions électroniques sur des substrats aussi différents que du verre, du papier ou des substrats organiques flexibles. Durant leurs utilisations, ces systèmes électroniques flexibles doivent s'accommoder de façon réversible à des contraintes mécaniques de traction bien au-delà de la ductilité intrinsèque des matériaux électroniques actifs dont ils sont constitués. Le développement de l'électronique flexible et/ou étirable est à l'avant-garde des efforts de recherche multidisciplinaires allant du génie civil à la science des matériaux. Les fonctionnalités magnétiques peuvent fournir des caractéristiques à cette nouvelle électronique qui n'est pas disponible par d'autres moyens. Alors que la réalisation de capteurs magnétorésistifs flexibles a déjà été démontrée, les travaux menés durant cette thèse sont axés sur l'influence de l'application de grandes déformations sur les propriétés magnétiques, influence qui n'a été que peu abordée jusqu'alors par la communauté scientifique. Ainsi, dans cette section, nous présentons l'état de l'art actuel, nécessairement concis, concernant les travaux réalisés dans le cadre de l'étude de films et nanostructures déposés sur substrat flexible. Nous présentons ainsi quelques exemples d'applications allant de la robotique douce à l'électronique dite éphémère. Nous présentons ensuite de manière un peu plus détaillée quelques travaux menés sur des systèmes magnétiques flexibles. Nous verrons par ailleurs que lorsque ces systèmes sont sujets à de grandes déformations, la viabilité de leurs propriétés fonctionnelles peut être remise en cause. Enfin, nous présenterons les objectifs poursuivis durant ces trois années de thèse.

1. L'électronique flexible et/ou étirable

L'intérêt pour les matériaux métalliques déposés sur des substrats flexibles et/ou étirables (polymères comme le Kapton®, PET, PDMS, PVDF,...) est croissant en raison de leur déformabilité, c'est-à-dire qu'ils sont façonnables sur demande même après leur fabrication, allant de simples courbures à des dispositifs curvilignes complexes. Les systèmes électroniques étirables ont la particularité de conserver certaines de leurs propriétés fonctionnelles même dans le cas de l'application de fortes contraintes mécaniques. Ainsi, des matériaux électroniques organiques ont été utilisés pour fabriquer des systèmes étirables possédant diverses fonctionnalités [1-3]. Parmi les travaux que l'on peut considérer comme pionniers de cette électronique étirable, on peut citer ceux de S. Wagner et *al.* [4] qui ont mis en évidence le fait que des films minces "ondulés" peuvent être étirés jusqu'à une dizaine de pourcent (voire 100%) sans perdre leurs propriétés conductrices. Ces films minces (5 à 500nm) ondulés d'Or ont été obtenus en pré-étirant le substrat élastomère (PDMS) sur lesquels ils sont déposés et en déposant une couche d'accroche de Chrome. En fonction de la valeur de la déformation imposée au substrat avant dépôt du film mince, ces travaux montrent que les films conservent une valeur de résistance quasi-constante et faible, comme le montre la figure 1.1.

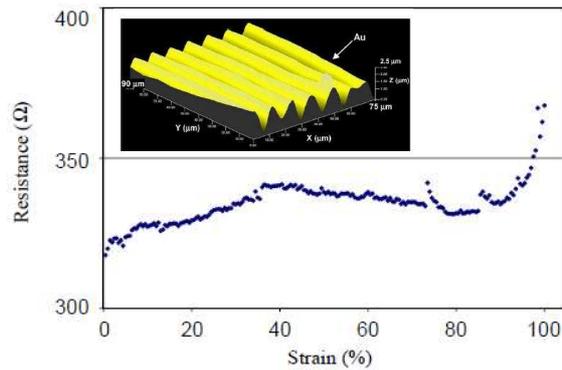


Figure 1.1: Variation de la résistance électrique d'un film mince (20 nm) d'Or déposé sur un substrat PDMS pré-étiré à 25%. La résistance électrique est faible et à peu près constante jusqu'à 100% de déformation. L'insert correspond à un profil 3D de la surface d'un film mince déposé sur un substrat pré-étiré à 15% [4].

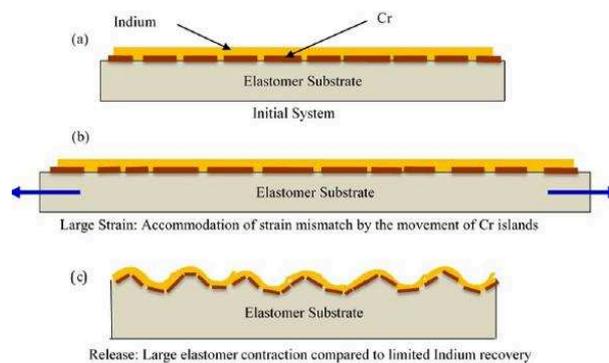


Figure 1.2: Schéma présentant le design d'un système métal/polymère (Indium/PDMS). On voit qu'une couche de Cr craquelé a été déposée entre le métal et le polymère afin de limiter l'apparition de fissure au sein du film [4].

Suite à cela, de nombreux travaux ont été menés sur la fabrication et le design d'interconnexions métalliques [5-10]. Ces derniers sont des structures polymère/métal pouvant être hautement étirable. La figure 1.2 présente un exemple de ce type de système. Par ailleurs, les travaux qui ont montré que des nanomembranes de Silicium déposées sur substrat élastomère (PDMS) pré-étiré pouvaient également supporter de grandes déformations ont rendu les composants électroniques fonctionnels et les circuits logiques étirables [11]. La figure 1.3 présente de manière succincte la grande variété d'applications qu'il est ainsi possible d'envisager. Cela va des diodes électroluminescentes [12, 13], des cellules solaires organiques [14], des transistors [15] aux supercondensateurs [16]. Ces applications peuvent également inclure la détection de stimuli mécaniques [17, 18, 19], optiques [20], thermiques [21, 22] ou bioélectriques [23, 24].

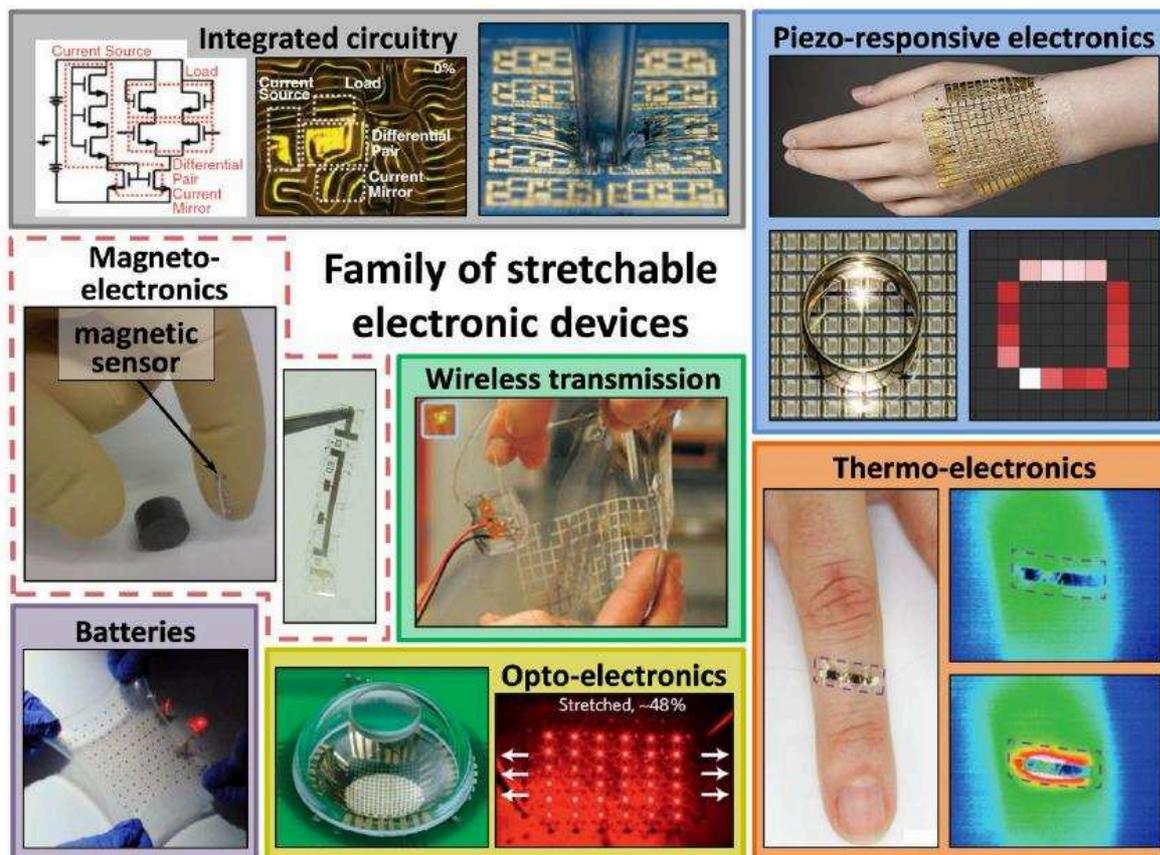


Figure 1.3 : Aperçu des fonctionnalités disponibles dans les appareils électroniques étirables: Diverses capacités ont déjà été démontrées. Figure compilée à partir de [11,14,20,25,26,27,28,29].

Aujourd'hui, de nouveaux développements visent à ajouter d'autres caractéristiques en plus de l'extensibilité et de la déformabilité. L'électronique « éphémère » [30, 31] vise ainsi à dissoudre complètement le système électronique après que celui-ci ait accompli sa tâche. Deux exemples assez spectaculaires sont présentés dans la figure 1.4. Sur les trois images du haut, est présenté un capteur permettant de mesurer l'hydratation qui se dissout clairement au bout de 2 jours. Les images du bas montrent un système permettant de réaliser des opérations de thérapie. Ce système a été implanté sous la peau d'une souris. Les images de droite montrent que ce dispositif électronique a presque complètement été dissout après avoir passé trois semaines sous la peau de cette souris. Parallèlement à cela, se développe également une électronique dite de la peau ("e-skins") [32, 33, 34] qui est *in fine* assez proche de l'électronique éphémère, tout du moins tant que le dispositif n'a pas été dissout, dans laquelle les systèmes électroniques sont posés directement au contact de tissus biologiques. L'idée est alors que ces systèmes vont pouvoir se conformer sur le tissu biologique en suivant tous ses mouvements naturels, incluant les étirements et autres distorsions. Idéalement, ces peaux électroniques ne doivent en effet pas restreindre la mobilité naturelle du tissu et sont éventuellement imperceptible pour l'utilisateur. Ces systèmes pourront par exemple sonder les changements de température du corps humain [21, 35], surveiller ses conditions physiologiques [36] ou encore administrer des doses de médicaments à la demande [37].

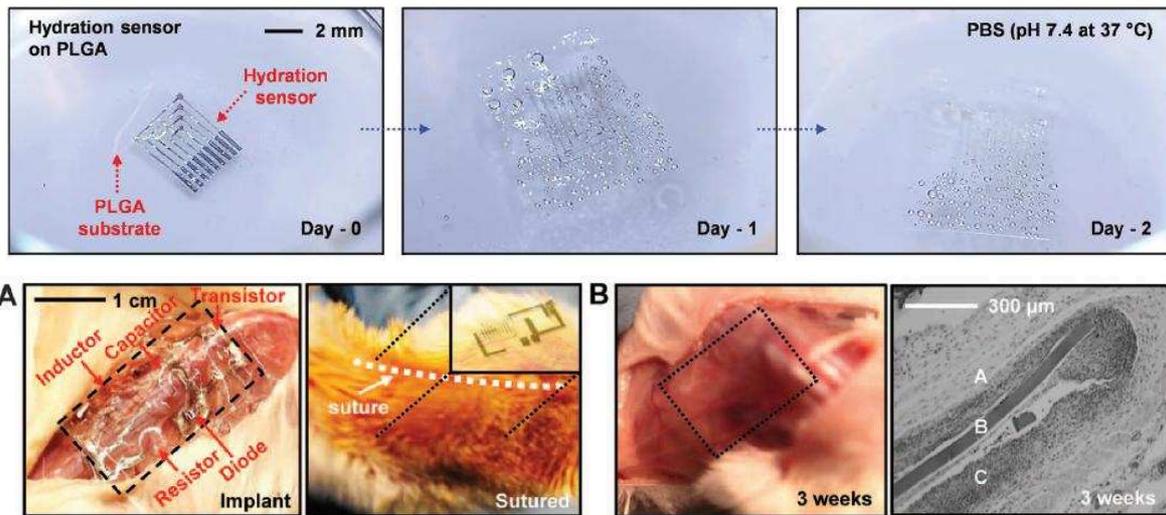


Figure 1.4: Haut: images d'un capteur d'hydratation transitoire sur un film polymère (PLGA) à différents stades de dissolution au cours de l'immersion dans des solutions tampons de phosphate à température physiologique (37°C) après 1 jour et 2 jours [31]. Bas: Evaluations in vivo et exemple d'un dispositif biorésorbable transitoire pour de la thérapie thermique. (A) Images d'une plate-forme de démonstration implantée (à gauche) et suturée (à droite) située dans la région dorsale sous-dermique d'une souris. (B) Site de l'implant, excisée après 3 semaines (gauche). (Droite) Coupe histologique du tissu sur le site de l'implant, montrant une région partiellement résorbée du film. (A, tissu sous-cutané, B, film, C, couche musculaire) [30].

2. La magnéto-électronique flexible

En dépit du nombre important de propriétés fonctionnelles que l'on peut trouver dans les systèmes flexibles, l'aspect système « magnétique » ou « magnéto-électronique » flexible n'a été que peu abordé par la communauté scientifique. Durant ce travail de thèse, nous nous sommes particulièrement focalisé sur ces systèmes magnétiques flexibles. Il est en effet aisé de penser que la fonctionnalité magnétique offerte par cette magnéto-électronique flexible pourra être bénéfique dans de nombreuses applications. Les applications de cette magnéto-électronique flexible pourront par exemple permettre la détection de particules magnétique dans des écoulements fluidiques, s'incorporer dans les laboratoires sur puce (lab-on-a-chip) ou encore s'adapter sur les tissus biologiques à l'instar de ce que nous avons déjà évoqué dans la section précédente. Dans ce domaine, les travaux menés sur les systèmes à magnétorésistance géante (GMR) par Uhrmann et *al.* [38] et Ozkaya et *al.* [39] peuvent apparaître comme pionniers. L'objectif principal de leurs études a été de démontrer la faisabilité de la fabrication d'un capteur magnétorésistif sur substrat flexible. Peu après, Barraud et *al.* ont étudié des systèmes à magnétorésistance tunnel (TMR) déposés sur substrat flexible [40]. Ils ont montré que les propriétés de transport de spin peuvent être préservées après que le système ait été soumis à d'importantes déformations mécaniques (1%) réalisées par le biais d'essais de courbure.

Parmi les travaux les plus récents, nous pouvons citer ceux réalisés par le groupe de Denys Makarov (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Germany). Ce groupe s'intéresse au développement de systèmes magnétiques flexibles mais surtout étirables pour des applications dans le domaine des capteurs. Il a par exemple développé des systèmes GMR (Co/Cu et Permalloy/Cu) sur substrats étirable (PET) et flexible (Kapton®) comme le montre la figure 1.5 (images de gauche). Ils ont démontré les potentialités de ces systèmes pour les implants intelligents et les capteurs de proximité pour l'électronique sur peau ou portable. Un autre exemple de leurs travaux est présenté sur la figure 1.5 (images de droite) [41]. Il s'agit d'un système GMR étirable (jusqu'à 29%). Pour obtenir un tel système, ils ont pré-étiré le substrat élastomère-PDMS à l'instar de ce qu'avait proposé S. Wagner et *al.* [32] sur lequel le système GMR a été fabriqué. Malgré les fissures qui apparaissent au cours des essais de traction, le taux de magnétorésistance reste plus ou moins réversible pour des déformations assez importantes.

La figure 1.6-a) montre une image d'un banc de mesure développé par Bedoya et *al.* [42] permettant de mesurer (*in situ*) la magnétorésistance d'un système type TMR sur Kapton® lorsque celui-ci est mécaniquement sollicité (essai de courbure). Leur système est du type Co/Al₂O₃/NiFe et leurs mesures ont montré l'application d'une courbure assez importante (rayon $r=5$ mm) laissant les performances de leurs dispositifs inchangés (voir figure 1.6-b). Cela peut apparaître comme surprenant car il semblerait que les effets magnéto-élastiques (anisotropie magnétique dépendante de la déformation) ainsi que les effets d'endommagement qui apparaissent à des déformations relativement faibles (quelques %) n'ont pas d'effet sur les propriétés magnétorésistives de leur système.

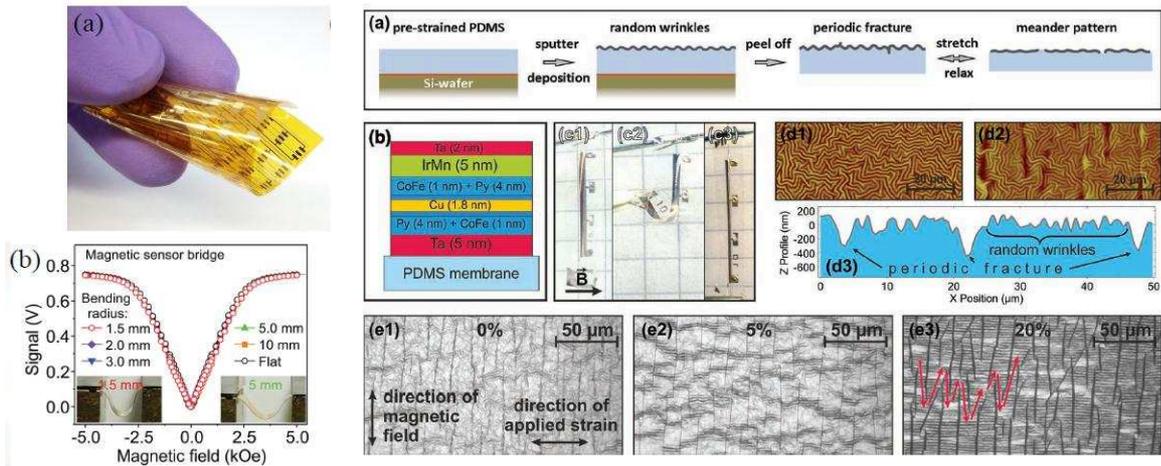


Figure 1.5. Gauche: a) Réseau de systèmes magnéto-sensibles flexibles. Ils sont composés de multicouches Co/Cu déposées sur une feuille de Kapton®. Ces capteurs magnéto-sensibles peuvent être utilisés pour surveiller les déplacements ou les mouvements et fournir une rétroaction au besoin. b) Réponse du capteur magnétique mesuré pour différentes courbures et tracée en fonction du champ magnétique appliqué. **Droite:** a) Schéma présentant la fabrication du dispositif magnétique étirable. b) Empilement GMR étudié. c) Photos présentant le système flexible déposé sur un élastomère pré-étiré (3), tordu manuellement (2) et plat (1). d) Mesures AFM et profil 1D du système avant et après décollement. Images optique de la surface du capteur à différentes déformations (1) 0%, (2) 5% et (3) 20%. Les directions de la déformation de traction appliquée et du champ magnétique sont indiquées en (e1). Sur l'image de droite, une voie conductrice à travers le film de capteur fracturé est indiquée [41].

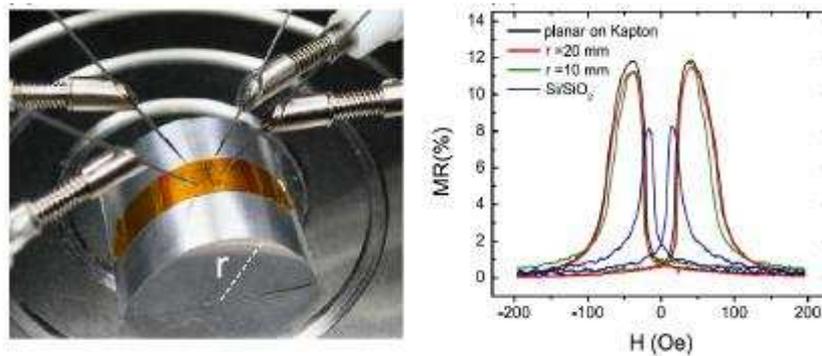


Figure 1.6: Photo de l'expérience de l'angle de flexion magnéto-transport; le rayon du support incurvé est utilisé comme paramètre dans la caractérisation de l'appareil. (b) rapport TMR d'un dispositif Co/Al₂O₃/NiFe cultivé sur SiO₂ et sur Kapton, dans ce dernier cas en fonction de l'angle de flexion. [42]

Les systèmes à magnéto-impédance géante (GMI) sur substrat flexible ne sont pas en reste. Ils ont en effet également été étudiés par quelques groupes de chercheurs, notamment celui de Jürgen Kosel (Kaust, Saudi Arabia). Ainsi, Li et al. [43] ont montré par des mesures de résonance ferromagnétique sur des systèmes du type Ni₈₀Fe₂₀/Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Kapton® soumis à des essais de courbures (voir la figure 1.7 (images de gauche)) qu'en dépit du faible coefficient de magnétostriction (déformation liée à l'application d'un champ magnétique) de leurs films ($\lambda=0,06 \times 10^{-6}$), la magnéto-impédance mesurée était extrêmement sensible aux déformations élastiques (i. e. à la courbure imposée) comme le montre la figure 1.7 (images de droite).

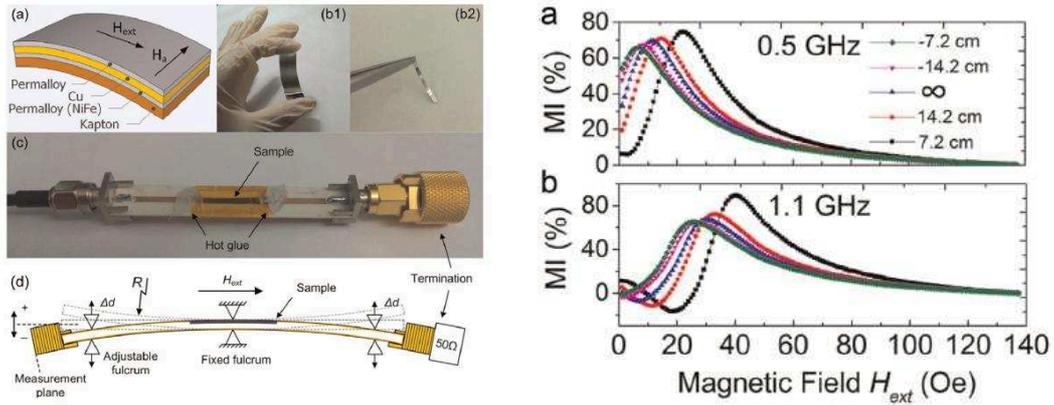


Figure 1.7. Gauche: a) Schéma présentant le système étudié. b1) Photo d'un système déposé sur Kapton. b2) Photo d'un capteur à magnéto-impédance. c) Image montrant le capteur monté sur le porte échantillon. d) Schéma du principe des mesures de magnéto-impédance sous déformation. **Droite:** a) taux de magnéto-impédance mesuré à 0,5 GHz et 1,1 GHz pour différents rayons de courbure [43].

En résumé, jusqu'à présent, nous avons vu que les principaux groupes internationaux dans le domaine de la magnéto-électronique flexible/étirable ont beaucoup étudié les propriétés magnétiques de ces systèmes sous contrainte sans s'intéresser en profondeur aux mécanismes de déformations et des champs élastiques subséquents. Pourtant, il est crucial d'étudier l'effet des sollicitations mécaniques sur les propriétés magnétiques en lien avec les micro-mécanismes de déformation incluant la plasticité et les phénomènes de fissuration. En effet, ces systèmes sont destinés à être exposés à de grandes déformations répétées lors de leur fabrication et utilisation. Par conséquent, leur fiabilité est également un enjeu très important pour préserver les propriétés magnétiques du système. Ainsi, lorsqu'un film mince est déposé sur un substrat souple, il est habituellement soumis à de fortes contraintes mécaniques dues à l'étirement ou à la courbure de l'ensemble du système. De plus, ces contraintes sont d'autant plus importantes que le contraste du module de Young est élevé entre le film et le substrat. Ce contraste peut être caractérisé par le paramètre Dundurs (α_{Dun}) [44]:

$$\alpha_{Dun} = \frac{\overline{E_f - E_s}}{\overline{E_f + E_s}}$$

Les indices f et s correspondent au film et au substrat. On utilise par ailleurs les modules de Young réduit : $\overline{E} = E/(1 - \nu^2)$, où ν est le coefficient de Poisson. La valeur de α_{Dun} varie de -1 pour un substrat rigide à 1 pour un substrat souple. L'ensemble des systèmes étudiés dans le cadre de cette thèse présentent des paramètres de Dundurs compris entre 0,9 et 1. Dans ces conditions, un petit effort appliqué au système conduit rapidement à de grandes contraintes au sein du milieu magnétique. Ces contraintes mécaniques plus ou moins importantes peuvent avoir des effets importants sur les propriétés magnétiques statiques et dynamiques. Il est à noter que cette modification des propriétés magnétiques se voit dès l'application de petites déformations (*i. e.* dans le domaine élastique) par le biais de l'énergie magnéto-élastique mais également à très grande déformation avec l'apparition du phénomène de multi-fissuration que nous n'avons pas encore abordé. En effet, lorsqu'un film métallique déposé sur un substrat polymère est soumis à un essai uniaxial, des fissures perpendiculaires à la contrainte apparaissent dans le film. Ces différentes ruptures d'invariance dans le plan du film font apparaître de nombreuses surfaces propices à l'apparition de densité de charge "fictives" surfaciques d'aimantation et par conséquent d'interactions magnétostatique supplémentaires à

même de modifier les propriétés magnétiques du film. L'étude quantitative de ces effets magnéto-mécaniques nécessite la connaissance de certaines grandeurs physiques qu'il n'est pas toujours aisé de trouver pour certains matériaux magnétiques. Ainsi, les coefficients de magnétostriction des matériaux les plus en vogue dans le domaine de la spintronique ne sont pas toujours connus. C'est la raison qui a poussé de nombreux groupes à développer des bancs de mesures plus ou moins originaux et plus ou moins sophistiqués afin de sonder les propriétés magnétiques lorsqu'une déformation est appliquée et parfois à simultanément étudier les propriétés mécaniques au travers par exemple de la mesure des champs de déplacement afin d'extraire des données quantitatives.

Parmi les instrumentations permettant une détermination quantitative des coefficients de magnétostriction, nous pouvons citer la magnétométrie à effet Kerr magnéto-optique (MOKE) sous déformations imposées par courbure [39, 45], la mesure de la déflexion de substrat sous champ magnétique [46], la mesure par vibrométrie laser [47], les expériences de résonance ferromagnétique sous déformations [48] ou encore les mesures par magnétométrie à échantillon vibrant [49]. A titre d'exemple, Ludwig et *al.* [50] ont mesuré la magnétostriction de film mince en courbant le système film/substrat à l'aide d'une mesure de perméabilité haute fréquence. Ils ont montré que le changement de la perméabilité en fonction de la déformation est directement relié à la magnétostriction. La légère difficulté est que la relation entre les deux paramètres n'est pas linéaire, comme le montre la figure 1.8.

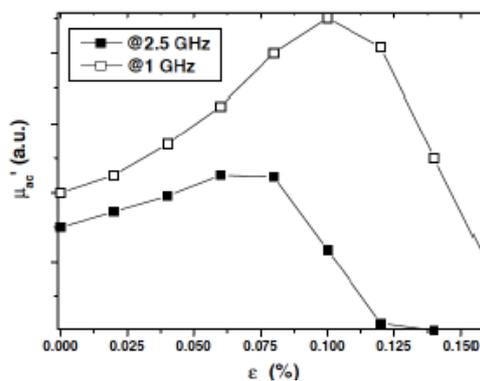


Figure 1.8: Evolution de la perméabilité en fonction de la contrainte de traction appliquée pour un système multicouche à magnétostriction positive (FeCo (2.1 nm) / CoB (0.9nm)) sur polyimide. [50]

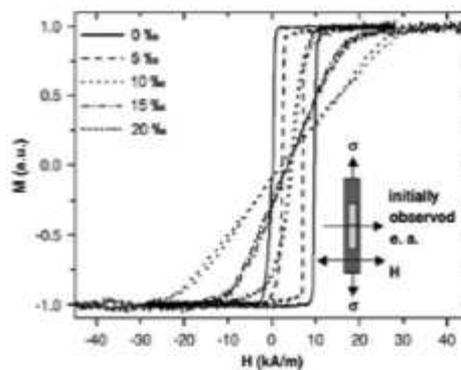


Figure 1.9: Courbes d'aimantation de la couche libre à l'état non contraint et sous quatre niveaux de déformation différents: 0% (ligne continue), 0,5% (ligne pointillée), 1% (ligne pointillée), 1,5% (ligne pointillée), 2% courte ligne pointillée). [38]

Uhrmann et al. [38] ont été les premiers à réaliser des mesures MOKE avec déformations *in situ* de systèmes magnétiques flexibles (une GMR d'empilement CoFe/Cu/CoFe) qui ont montré que le retournement de l'aimantation, observé *via* les courbes d'aimantation, était clairement affecté par les déformations imposées (sans néanmoins donner de valeur quantitative des coefficients de magnétostriction). La figure 1.9 montre clairement que l'axe de facile aimantation initiale de la couche libre passe progressivement à un axe difficile. Par ailleurs, Ozkaya et al. [39] ont estimé ce coefficient dans un système GMR (Co/Cu/Ni) à partir de courbes de magnétorésistance et d'aimantation (par MOKE) mesurées *in situ* lors d'essais de traction. Ils ont réussi à séparément déterminer les coefficients de magnétostriction de chacune des couches en introduisant une forme d'énergie magnétoélastique proposé par H. Holloway et D. J. Kubinski [51] dans leurs modèles micromagnétiques. Les modélisations de leurs courbes expérimentales (GMR et MOKE) sont présentées sur la figure 1.10. Un point assez curieux est qu'ils proposent des valeurs de magnétostrictions vraiment faibles si l'on s'en réfère aux valeurs des composés massifs (1,75 ppm au lieu de 60 ppm pour le film de Cobalt et -0.4 ppm au lieu de -30 ppm pour le film de Ni). Ozkaya et al. évoquent des effets de tailles dans leur papier pour justifier cela. Ces effets peuvent exister mais se manifestent généralement pour des couches ultra-minces (quelques nanomètres). La conclusion que nous pouvons en tirer est qu'il n'est pas aisé de déterminer ces coefficients de manière quantitative (en utilisant leurs méthodes) pour des empilements de couches d'autant plus que leur modèle ne prend pas en compte les éventuels échanges intercouches.

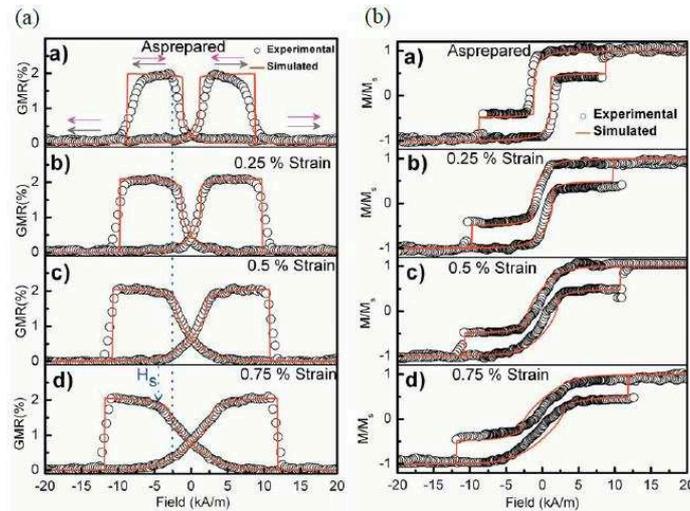


Figure 1.10: Courbes théoriques et expérimentales d'un système GMR Co(8nm)/Cu(4.2nm)/Ni(8nm) à différentes déformations appliquées (0%, 0.25%, 0.5% and 0.75%). (a) Courbes GMR et (b) Courbes d'aimantation (MOKE) [39].

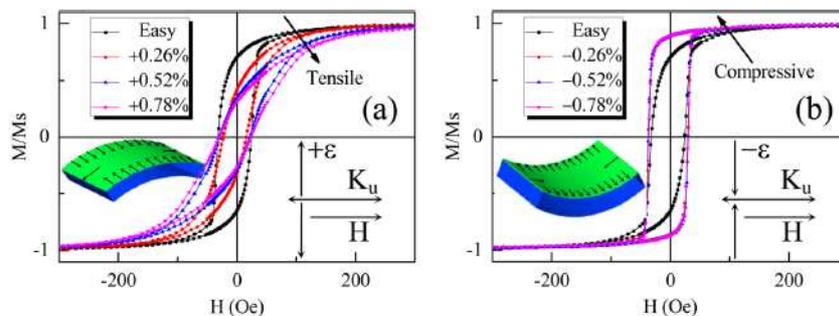


Figure 1.11: Courbes d'aimantation du système $Fe_{81}Ga_{19}/PET$ obtenues pour différentes valeurs de déformations (positives (a) et négatives (b)) [52].

Dai et al. [52] ont réussi à mesurer ce coefficient dans le cas d'un système $\text{Fe}_{81}\text{Ga}_{19}/\text{PET}$ sous contrainte uniaxiale, par une méthode combinant le MOKE et la flexion *in situ*. Les courbes d'aimantation sont obtenues en courbant le système vers l'intérieur ou l'extérieur (voir figure 1.11). Ces mesures montrent que l'axe de facile aimantation initial peut être rendu difficile (et *vice versa*). Ils ont analysé leurs courbes de manière assez simple en utilisant le modèle de Stoner-Wolfarth dans lequel une énergie magnétoélastique a été ajoutée. Leur modélisation conduit à des valeurs assez élevées du coefficient de magnétostriction (100 ppm), ce qui est en accord avec ce type d'alliage sous forme massive.

Enfin, parmi toutes les techniques permettant de sonder les propriétés magnétiques et d'en extraire des grandeurs physiques quantitatives, les mesures inductives telles que la résonance ferromagnétique (FMR) sont certainement les plus pertinentes. En effet, elles permettent à la fois la mesure des propriétés statiques (de manière plus ou moins direct) mais également les propriétés dynamiques (tels que l'amortissement de Gilbert, les modes magnétostatiques localisés, ...). Weiler et al. [53] ont par exemple utilisé la FMR-large bande pour quantifier l'effet d'un champ électrique sur l'anisotropie magnétique de films minces de Ni déposés sur un actionneur piézoélectrique. L'actionneur piézoélectrique se déforme lors de l'application d'une tension (V_p). En raison de son élasticité, un allongement (resp. contraction) dans une direction est toujours accompagné d'une contraction (resp. allongement) dans les deux directions orthogonales. Par conséquent, pour $V_p > 0$, l'actionneur se déploie le long de son axe d'élongation dominant (ici y) et se contracte le long des deux directions orthogonales (et inversement pour $V_p < 0$) comme le montre la figure 1.12. Comme le film de Ni est directement déposé sur l'actionneur, les déformations élastiques sont bien transmises entre l'actionneur piézoélectrique et le film. Par conséquent, l'énergie magnétoélastique du film mince peut induire une rotation de l'axe facile en fonction de la façon dont elle est activée (tension électrique positive ou négative). Expérimentalement, cela se traduit par des décalages des spectres de résonance ferromagnétique (voir figure 1.13) et par une modification de la dépendance angulaire du champ de résonance (illustré sur les figures 12-c et 12-e).

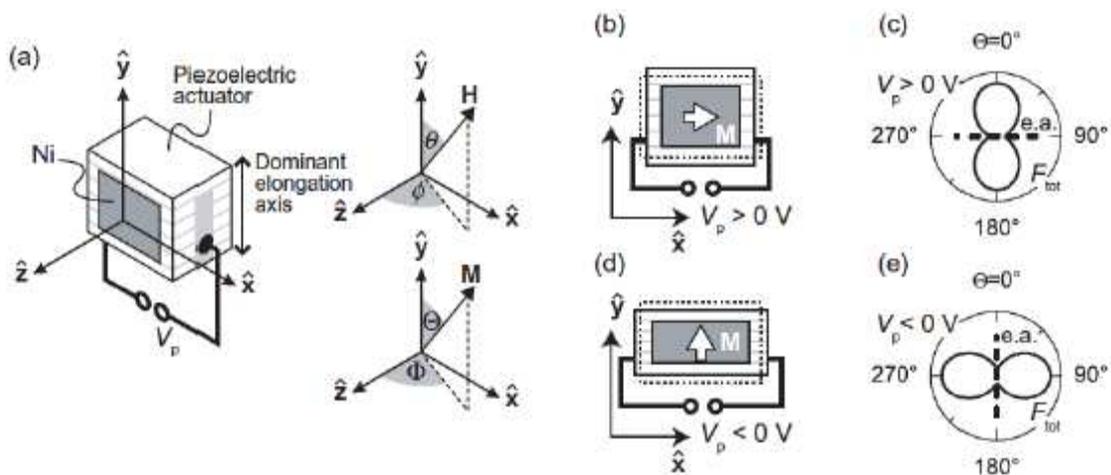


Figure 1.12: a) Schéma de l'hétérostructure Ni/Actionneur piézoélectrique. b),d) L'application d'une tension à l'actionneur entraîne une déformation de l'actionneur et du Ni. L'actionneur relaxé (à tension nulle) est représenté par des pointillés. c),e) Schéma de l'énergie magnétique dans le plan du film. L'axe facile est représenté par des pointillés, il peut passer de 0° à 90° en fonction de la tension appliqué (positive ou négative) [53].

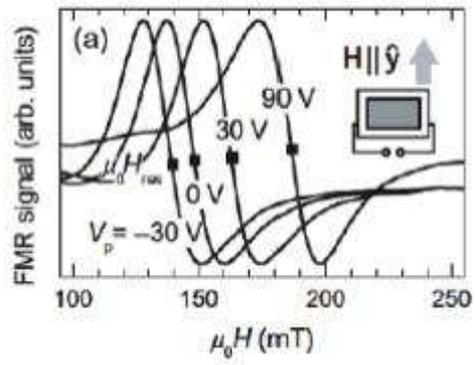


Figure 1.13: Spectres de résonance ferromagnétique enregistrés à différentes tensions V_p [53].

3. Objectifs de la thèse et organisation du manuscrit

Les travaux présentés dans ce manuscrit sont essentiellement expérimentaux. Nous verrons au cours du chapitre 4 que lorsqu'un film mince sur substrat polymère est soumis à des déformations importantes, des fissures apparaissent au delà d'une déformation critique (typiquement 1-4% pour les films minces étudiés durant cette thèse). Lorsque l'essai de traction est uniaxial, ces fissures se propagent perpendiculairement à la direction de sollicitation et peuvent traverser la largeur de l'échantillon. Pour des déformations encore plus importantes, on observe l'apparition de fissures interfaciales (décollements du film mince). C'est d'ailleurs pour s'affranchir de ces effets de multifissuration et de décohésion que S. Wagner et *al.* [4] ont proposé de pré-étirer le substrat polymère avant dépôt. Mais l'objectif principal de cette thèse est plutôt d'étudier expérimentalement l'influence de l'apparition de ces fissures et de ces décollements sur les propriétés magnétiques des films minces. Pour cela nous avons combiné plusieurs techniques expérimentales comme la résonance ferromagnétique ou la microscopie à forces atomiques à une mini-machine de traction (Deben®). Par ailleurs, nous avons étendu ces études à des réseaux de nanolignes magnétiques sur substrat polymère que nous avons également soumis à de grandes déformations. Nous verrons que ces réseaux peuvent également constituer une alternative au pré-étirement du substrat polymère.

Le présent manuscrit est organisé en sept chapitres différents dont celui-ci et le chapitre conclusions/perspectives. Les méthodes employées pour la fabrication des échantillons (film mince et réseaux de nanolignes) étudiés durant cette thèse sont présentées dans le chapitre 2. Le troisième chapitre est dédié à la présentation des techniques expérimentales employées afin d'étudier les propriétés magnétiques et mécaniques des films minces et des réseaux de nanolignes. A cette occasion, nous rappellerons quelques éléments de mécanique ainsi que de la théorie du micromagnétisme. Les chapitres 4, 5 et 6 présentent les résultats expérimentaux que nous avons obtenus durant cette thèse. Les résultats expérimentaux obtenus à partir des films minces étant plus nombreux, nous leurs consacrons deux chapitres (4 et 5) alors que le chapitre 6 concerne uniquement les résultats obtenus sur les réseaux de nanolignes. Finalement, ce manuscrit se termine par un chapitre 7 qui est une synthèse des principaux résultats obtenus et une présentation des perspectives à ce travail de thèse.

Bibliographie

- [1] T. Sekitani, T. Someya, "Stretchable, Large-area Organic Electronics", *Advanced Materials* 22 (20), 2228 (2010).
- [2] D. J. Lipomi, B. C. Tee, M. Vosgueritchian, Z. N. Bao, "Stretchable Organic Solar Cells", *Advanced Materials* 23 (15), 1771 (2011).
- [3] J.-H. Kim, M. J. Han, S. Seo, "Flexible, stretchable, and patchable organic devices integrated on freestanding polymeric substrates", *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* (2015).
- [4] S. Wagner, S. P. Lacour, J. Jones, P.-H. I. Hsu, J. C. Sturm, T. Li, Z. Suo, "Electronic skin: architecture and components", *Physica E* 25 (2-3), 326 (2004).
- [5] T. Sekitani, Y. Noguchi, K. Hata, T. Fukushima, T. Aida, T. Someya, "A rubberlike stretchable active matrix using elastic conductors", *Science* 321 (5895), 1468 (2008).
- [6] M. Park, J. Im, M. Shin, Y. Min, J. Park, H. Cho, S. Park, M.-B. Shim, S. Jeon, D.-Y. Chung, J. Bae, J. Park, U. Jeong, K. Kim, "Highly stretchable electric circuits from a composite material of silver nanoparticles and elastomeric fibres", *Nature Nanotechnology* 7 (12), 803 (2012).
- [7] D. S. Gray, J. Tien, C. S. Chen, "High-conductivity elastomeric electronics", *Advanced Materials*, 16 (5), 393 (2004).
- [8] M. Gonzalez, F. Axisa, M. V. Bulcke, D. Brosteaux, B. Vandeveld, J. Vanfleteren, "Design of metal interconnects for stretchable electronic circuits", *Microelectronics Reliability* 48 (6), 825 (2008).
- [9] T. Araki, M. Nogi, K. Suganuma, M. Kogure, O. Kiriara, "Printable and Stretchable Conductive Wirings Comprising Silver Flakes and Elastomers", *IEEE Electron Device Letters* 32 (10), 1424 (2011).
- [10] J. A. Fan, W.-H. Yeo, Y. Su, Y. Hattori, W. Lee, S.-Y. Jung, Y. Zhang, Z. Liu, H. Cheng, L. Falout, M. Bajema, T. Coleman, D. Gregoire, R. J. Larsen, Y. Huang, J. A. Rogers, "Fractal design concepts for stretchable electronics", *Nature Communications* 5, 8 (2014).
- [11] D.-H. Kim, J.-H. Ahn, W. M. Choi, H.-S. Kim, T.-H. Kim, J. Song, Y. Y. Huang, Z. Liu, C. Lu, J. A. Roger, "Stretchable and foldable silicon integrated circuits", *Science* 320 (5875), 507 (2008).
- [12] Z. B. Yu, X. Niu, Z. T. Liu, Q. B. Pei, "Intrinsically Stretchable Polymer Light-Emitting Devices Using Carbon Nanotube-Polymer Composite Electrodes", *Advanced Materials* 23 (34), 3989 (2011).
- [13] M. S. White, M. Kaltenbrunner, E. D. Glowacki, K. Gutnichenko, G. Kettlgruber, I. Graz, S. A azou, C. Ulbricht, D. A. M. Egbe, M. C. Miron, Z. Major, M. C. Scharber, T. Sekitani, T. Someya, S. Bauer, N. S. Sariciftci, "Ultrathin, highly flexible and stretchable PLEDs". *Nature Photonics* 7 (10), 811 (2013).
- [14] M. Kaltenbrunner, M. S. White, E. D. Glowacki, T. Sekitani, T. Someya, N. S. Sariciftci, S. Bauer, "Ultrathin and lightweight organic solar cells with high flexibility", *Nature Communication* 3, 770, (2012).
- [15] S. Das, R. Gulotty, A. V. Sumant, A. Roelofs, "All Two-Dimensional, Flexible, Transparent, and Thinnest Thin Film Transistor", *Nano Letters* 14, 2861–2866 (2014).
- [16] X. Li, T. L. Gu, B. Q. Wei, "Dynamic and Galvanic Stability of Stretchable Supercapacitors", *Nano Letters* 12 (12), 6366 (2012).
- [17] H. Vandeparre, D. Watson, S. P. Lacour, "Extremely robust and conformable capacitive pressure sensors based on flexible polyurethane foams and stretchable metallization", *Applied Physics Letters* 103 (20), 4 (2013).
- [18] D. J. Lipomi, M. Vosgueritchian, B. C.-K. Tee, S. L. Hellstrom, J. A. Lee, C. H. Fox, Z. Bao, "Skin-like pressure and strain sensors based on transparent elastic films of carbon nanotubes", *Nature Nanotechnology* 6 (12), 788 (2011).
- [19] T. Yamada, Y. Hayamizu, Y. Yomogida, A. I. Najafabadi, D. N. Futaba, K. Hata, "A stretchable carbon nanotube strain sensor for human-motion detection", *Nature Nanotechnology* 6 (5), 296 (2011).
- [20] H. C. Ko, M. P., Stoykovich, J. Song, V. Malyarchuk, W. M. Choi, C.-J Yu, J. B. Geddes, J. Xiao, J., S. Wang, Y. Huang, J. A. Rogers, "A hemispherical electronic eye camera based on compressible silicon optoelectronics", *Nature* 454 (7205), 748 (2008).

- [21] R. C. Webb, A. P. Bonifas, A. Behnaz, Y. Zhang, K. J. Yu, H. Cheng, M. Shi, Z. Bian, Z. Liu, Y.-S. Kim, W.-H. Yeo, J. S. Park, J. Song, Y. Li, Y. Huang, A. M. Gorbach, J. A. Rogers, "Ultrathin conformal devices for precise and continuous thermal characterization of human skin", *Nature Materials* 12 (10), 938 (2013).
- [22] M. Drack, I. Graz, T. Sekitani, T. Someya, M. Kaltenbrunner, S. Bauer, "An Imperceptible Plastic Electronic Wrap" *Advanced Materials* 27 (1), 34 (2015).
- [23] O. Graudejus, Z. Yu, J. Jones, B. Morrison, S. Wagner, "Characterization of an Elastically Stretchable Microelectrode Array and Its Application to Neural Field Potential Recordings", *Journal of the electrochemical Society* 156 (6), P85 (2009).
- [24] D.-H. Kim, N. Lu, R. Ghaffari, Y.-S. Kim, S. P. Lee, L. Xu, J. Wu, R.-H. Kim, J. Song, Z. Liu, J. Viventi, B. de Graff, B. Elolampi, M. Mansour, M. J. Slepian, S. Hwang, J. D. Moss, S.-M. Won, Y. Huang, B. Litt, J. A. Rogers, "Materials for multifunctional balloon catheters with capabilities in cardiac electrophysiological mapping and ablation therapy", *Nature Materials* 10 (4), 316 (2011).
- [25] J. A. Rogers, T. Someya, Y. G. Huang, "Materials and Mechanics for Stretchable Electronics", *Science* 327 (5973), 1603 (2010).
- [26] M. Melzer, D. Makarov, A. Calvimontes, D. Karnaushenko, S. Baunack, R. Kaltofen, Y. Mei, O. G. Schmidt, "Stretchable Magneto-electronics", *Nano Letters*. 11 (6), 2522 (2011).
- [27] R. H. Kim, D.-H. Kim, J. Xiao, B. H. Kim, S.-I. Park, B. Panilaitis, R. Ghaffari, J. Yao, M. Li, Z. Liu, V. Malyarchuk, D. G. Kim, A.-P. Le, R. G. Nuzzo, D. L. Kaplan, F. G. Omenetto, Y. Huang, Z. Kang, J. A. Rogers, "Waterproof AllnGaP optoelectronics on stretchable substrates with applications in biomedicine and robotics", *Nature Materials*. 9 (11), 929 (2010).
- [28] S. Cheng, Z. G. Wu, "Microfluidic stretchable RF electronics". *Lab Chip* 10 (23), 3227 (2010).
- [29] S. Xu, Y. Zhang, J. Cho, J. Lee, X. Huang, L. Jia, J. A. Fan, Y. Su, J. Su, H. Zhang, H. Cheng, B. Lu, C. Yu, C. Chuang, T.-il Kim, T. Song, K. Shigeta, S. Kang, C. Dagdeviren, I. Petrov, P. V. Braun, Y. Huang, U. Paik, J. A. Rogers, "Stretchable batteries with self-similar serpentine interconnects and integrated wireless recharging systems", *Nature Communications*. 4 (2013).
- [30] S.-W. Hwang, H. Tao, D.-H. Kim, H. Cheng, J.-K. Song, E. Rill, M. A. Brenckle, B. Panilaitis, S. M. Won, Y.-S. Kim, Y. M. Song, K. J. Yu, A. Ameen, R. Li, Y. Su, M. Yang, D. L. Kaplan, M. R. Zakin, M. J. Slepian, Y. Huang, F. G. Omenetto, J. A. Rogers, "A Physically Transient Form of Silicon Electronics", *Science* 337 (6102), 1640 (2012).
- [31] S.-W. Hwang, J.-K. Song, X. Huang, H. Cheng, S.-K. Kang, B. H. Kim, J.-H. Kim, S. Yu, Y. Huang, J. A. Rogers, "High-Performance Biodegradable/Transient Electronics on Biodegradable Polymers", *Advanced Materials* 26, 3905 (2014).
- [32] S. Wagner, S. P. Lacour, J. Jones, P.-H. I. Hsu, J. C. Sturm, T. Li, Z. Suo, "Electronic skin: architecture and components", *Physica E* 25 (2-3), 326 (2004).
- [33] D.-H. Kim, N. Lu, R. Ma, Y.-S. Kim, R.-H. Kim, S. Wang, J. Wu, S. M. Won, H. Tao, A. Islam, K. J. Yu, T.-I. Kim, R. Chowdhury, M. Ying, L. Xu, M. Li, H.-J. Chung, H. Keum, M. McCormick, P. Liu, Y.-W. Zhang, F. G. Omenetto, Y. Huang, T. Coleman, J. A. Rogers, "Epidermal Electronics", *Science* 333 (6044), 838 (2011).
- [34] V. J. Lumelsky, M. S. Shur, S. Wagner, "Sensitive Skin", *IEEE Sens. J.* 1 (1), 41 (2001).
- [35] I. Graz, M. Krause, S. Bauer-Gogonea, S. P. Lacour, B. Ploss, M. Zirki, B. Stadlober, S. Wagner, "Flexible active-matrix cells with selectively poled bifunctional polymer-ceramic nanocomposite for pressure and temperature sensing skin", *Journal of Applied Physics* 106 (3) (2009).
- [36] Huang, W. H. Yeo, Y. H. Liu, J. A. Rogers, "Epidermal Differential Impedance Sensor for Conformal Skin Hydration Monitoring", *Biointerphases* 7 (1-4) (2012).
- [37] D. Son, J. Lee, S. Qiao, R. Ghaffari, J. Kim, J. E. Lee, C. Song, S. J. Kim, D. J. Lee, S. W. Jun, S. Yang, M. Park, J. Shin, K. Do, M. Lee, K. Kang, C. S. Hwang, N. Lu, T. Hyeon, D.-H. Kim, "Multifunctional wearable devices for diagnosis and therapy of movement disorders", *Nature Nanotechnology* 9 (5), 397 (2014).
- [38] T. Uhrmann, L. Bar, T. Dimopoulos, N. Wiese, M. Ruhrig, A. Lechner, "Magnetostrictive GMR sensor on flexible polyimide substrates", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 307, 209 (2006).

- [39] B. Ozkaya, S. R. Saranu, S. Mohanan, U. Herr, "Effects of uniaxial stress on the magnetic properties of thin films and GMR sensors prepared on polyimide substrates" *Physica Status Solid applications and materials science* 205, 1876 (2008).
- [40] C. Barraud, C. Deranlot, P. Seneor, A. Mattana, B. Dlubak, S. Fusil, K. Bouzeshouane, D. Deneuve, F. Petroff, A. Fert, "Magnetoresistance in magnetic tunnel junctions grown on flexible organic substrates", *Applied Physics Letters* 96, 072502 (2010).
- [41] M. Melzer, G. Lin, D. Makarov, O. G. Schmidt, "Stretchable spin valves on elastomer membranes by predetermined periodic fracture and random wrinkling", *Advanced Materials* 24, 6468 (2012).
- [42] L. Bedoya-Pinto, M. Donolato, M. Gobbi, L. E. Hueso, P. Vavassori, "Flexible spintronic devices on Kapton" *Applied Physics Letters*, 104(6), 062412 (2014).
- [43] B. D. Li, M. N. Kavalzhiev, J. Kosel, "Flexible magnetoimpedance sensor", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 378, Pages 499-505 (2015).
- [44] J. Dundurs, "Effect of Elastic Constants on Stress In A Composite Under Plane Deformation", *Journal of Composite Materials*, 1, p310-322 (1967).
- [45] I. G. Will, A. Ding, Y. B. Xu, "Development of an in situ magnetoelastic magneto-optical Kerr effect magnetometer", *Review of Scientific Instruments*, 83, 064707 (2012).
- [46] W. Brückner, C. Lang, C. M. Schneider, "Sensitive measurement of magnetostriction effects in thin films by means of a two-beam free-sample deflection method", *Review of Scientific Instruments*, 72, 2496 (2001).
- [47] R. Varghese, R. Viswan, K. Joshi, S. Seifkar, Y. Zhou, J. Schwartz, S. Priya, "Magnetostriction measurement in thin films using laser Doppler vibrometry", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 363, 179–187 (2014).
- [48] K. Nesteruk, R. Zuberek, S. Piechota, M. W. Gutowski, and H. Szymczak, "Thin film's magnetostriction investigated by strain modulated ferromagnetic resonance at low temperature", *Measurement Science and Technology*, 25, 075502, (2014).
- [49] B. Buford, P. Daghat, A. Jander, "Measuring the inverse magnetostrictive effect in a thin film using a modified vibrating sample magnetometer", *Journal of Applied Physics* 115, 17E309, (2014).
- [50] A. Ludwig, M. Tewes, M. Glasmachers, M. Löhndorf, E. Quandt, "High-frequency magnetoelastic materials for remote-interrogated stress sensors", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 242-245, 1126-1131, (2002).
- [51] H. Holloway, D. J. Kubinski, "Magnetoresistive Co/Cu multilayers: Hysteresis, polycrystallinity, and irreversible changes on magnetization", *Journal of Applied Physics*, 83, 2705, (1998).
- [52] G. Dai, Q. Zhan, Y. Liu, H. Yang, X. Zhang, B. Chen, and R.-W. Li, "Mechanically tunable magnetic properties of Fe₈₁Ga₁₉ films grown on flexible substrates", *Applied Physics Letters* 100, 122407, (2012).
- [53] M. Weiler, A. Brandlmaier, S. Geprägs, M. Althammer, M. Opel, C. Bihler, H. Huebl, M. S. Brandt, R. Gross and S. T. B. Goennenwein, "Voltage controlled inversion of magnetic anisotropy in a ferromagnetic thin film at room temperature", *New Journal of Physics* 11, 013021, (2009).

Chapitre 2

Fabrication des échantillons

Sommaire

1. Choix du substrat et des matériaux magnétiques
 2. Dépôt des films minces magnétiques par pulvérisation magnétron
 - 2.1 Principe général
 - 2.2 Elaboration des films minces sur substrat polymère
 3. Fabrication des réseaux de nanolignes
 4. Essais sur PDMS
-

Dans ce chapitre, nous présentons les différents systèmes étudiés durant cette thèse ainsi que leurs méthodes d'élaborations. Nous commençons par justifier le choix des matériaux magnétiques utilisés ainsi que celui du substrat avant de présenter la méthode d'élaboration de nos deux types de systèmes : i) film mince magnétique sur substrat polymère et ii) réseau de nanolignes magnétiques sur substrat polymère. Nous présentons par la suite le principe général de la pulvérisation cathodique qui a été employée pour le dépôt des films minces et de la technique de nanolithographie par interférence employée quant à elle pour l'élaboration des réseaux de nanolignes. Nous finissons ce chapitre par une discussion autour d'essais de dépôt sur élastomère qui n'ont pas été vraiment concluants. Enfin, l'élaboration de ces systèmes a en grande partie été réalisée par Vignesh Gunasekaran, étudiant du Master 2 « Physique et Sciences des Matériaux », qui a accompli son stage de fin d'étude dans le groupe du professeur Adekunle O. Adeyeye de la NUS¹ dans le cadre d'une collaboration bilatérale entre l'USPC² et la NUS.

1. Choix du substrat et des matériaux magnétiques

Les systèmes étudiés durant cette thèse ont été déposés sur des substrats Kapton® qui fait partie de la famille des polyimides. La formule chimique du monomère est présentée sur la figure 2.1.

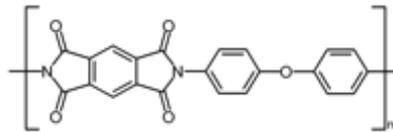


Figure 2.1 : Structure du Kapton®

Ce choix a été dicté par le fait que le Kapton® présente une combinaison attrayante de propriétés physiques. En effet, il présente une grande résistivité électrique³ ($\approx 10^{19} \Omega \cdot m$), une haute résistance à la traction mécanique (allongement à la rupture à environ 30%), une inertie chimique importante évitant alors une contamination des matériaux magnétiques déposés et présente finalement une stabilité chimique lors de traitements thermiques qui peuvent atteindre 650 K. Par ailleurs, le Kapton® est actuellement très répandu dans l'industrie de la microélectronique comme en témoigne son utilisation courante parmi les matériaux pour le vide (fenêtres sous vide). Les feuilles de Kapton® que nous avons utilisé présente une épaisseur de 125 μm . La rugosité de ces feuilles a été analysée par microscopie à forces atomiques, cette dernière est de quelques nm (~ 4 nm). En outre, nous avons réalisé différents essais de tractions uniaxiaux du Kapton® brut en découpant des « éprouvettes » (1 cm de large et 4 cm de long) afin de le caractériser. Un exemple de courbe force/déformation est présenté sur la figure 2.2 (a), (b), (c). Cette courbe a été obtenue en appliquant un déplacement correspondant à 3% (a), 5% (b) et 20% (c) de déformation de l'éprouvette et en ramenant ensuite la force de la machine de traction à 0 Newton, dans les deux premiers cas. Ainsi, la partie bleue de la courbe correspond à l'aller alors que la partie rouge correspond au retour. Il est intéressant de noter que le régime d'élasticité linéaire ne s'étale que sur quelques pourcent. La figure 2.2 (d), représente elle, l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation, pour ces 3

¹ Nationale University of Singapore.

² Université Sorbonne Paris Cité.

³ Pour comparaison, le cuivre présente une résistivité d'environ $17 \times 10^{-9} \Omega \cdot m$.

déplacements. Enfin, un essai sur une éprouvette plus courte (afin de pouvoir s'affranchir de la course limitée des mors de la machine de traction utilisée) nous a permis de mesurer un allongement à la rupture à environ 30%.

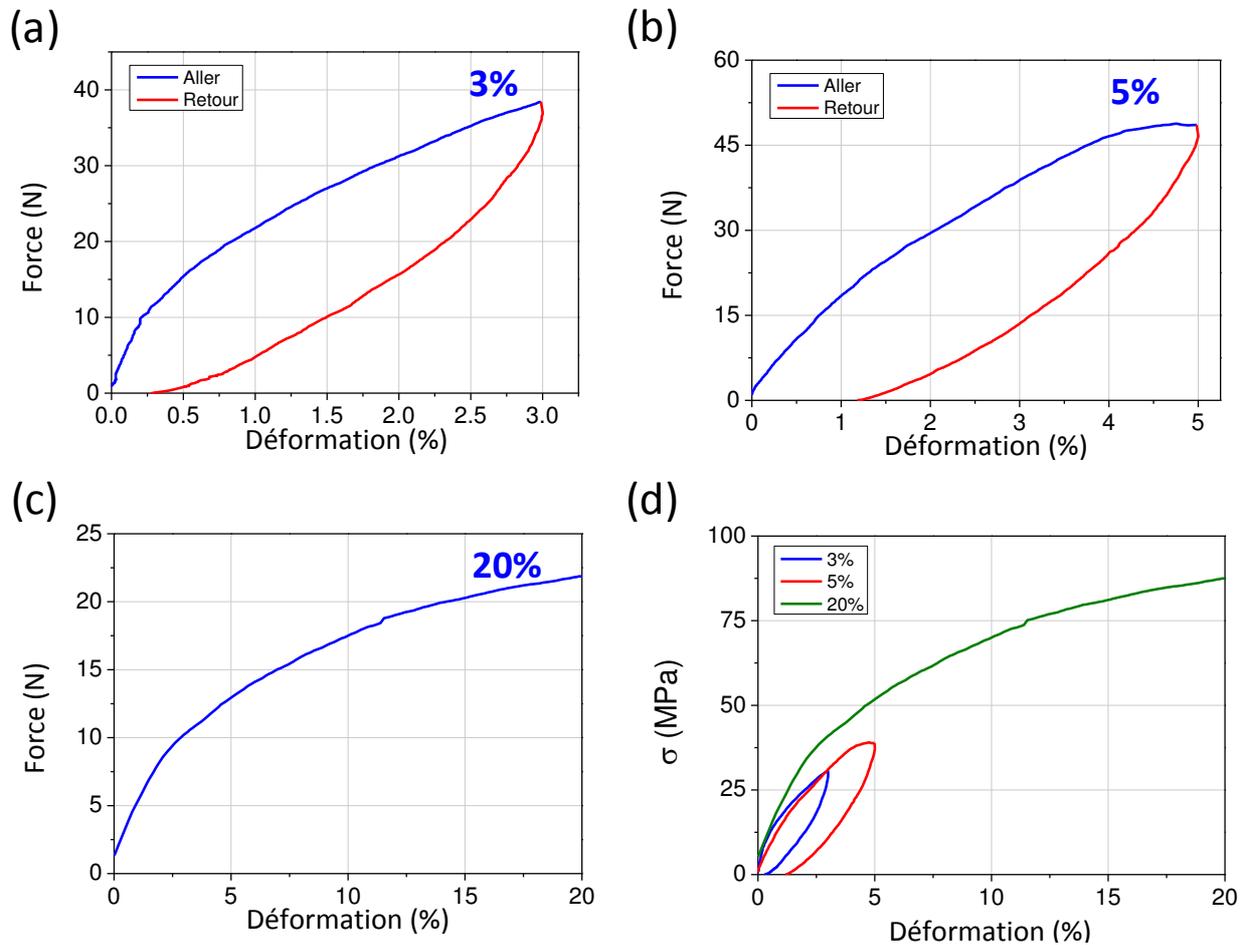


Figure 2.2 : Courbes de traction d'une éprouvette de Kapton® brute. **(a)**, **(b)** et **(c)** représentent l'évolution de la force appliquée en fonction de la déformation, dans le cas de déplacement à 3, 5 et 20%. **(d)** représente l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour ces 3 déplacements.

Les matériaux magnétiques ont été choisis en raison de leurs propriétés mécaniques supposées d'une part et pour l'intérêt technologique qu'ils peuvent susciter d'autre part, notamment dans le domaine de la spintronique. Nous avons ainsi décidé d'utiliser deux d'alliages différents, l'un du type CoFeB et le second du type NiFe. Les alliages du type CoFeB sont actuellement très prisés dans le domaine de la spintronique. En effet, ces alliages suscitent un engouement particulier depuis que l'on a obtenu des valeurs record de magnétorésistance tunnel (jusqu'à 604% à température ambiante et plus de 1000% à basse température [1], comme en témoigne la figure 2.3-c)), supérieures par exemples à celles observées dans les JTM épitaxiées du type Fe/MgO/Fe. Cet engouement est dû au fait que les JTM élaborés avec du CoFeB le sont avec des techniques compatibles avec une production à une échelle industrielle, comme la pulvérisation cathodique. Cela vient du fait que ces alliages présentent une polarisation en spin assez élevée mais également du fait que ces alliages sont amorphes (verres métalliques), ou tout du moins lors du dépôt initial. En effet, les valeurs de TMR mesurées expérimentalement sur les JTM épitaxiées sont généralement en-deçà de celles prédites par les calculs *ab initio*. Les propriétés de transport et d'hystérésis des systèmes magnétiques intégrant les alliages CoFeB bénéficient dès lors de leurs natures amorphes. En effet, les alliages magnétiques amorphes sont

généralement dépourvus de centres de nucléations (défauts cristallins : impuretés, joints de grains,...) présentant alors des propriétés magnétiques assez douces [2]. Cette structure amorphe conduit également à la définition d'interfaces CoFeB très lisses (même après recuit *ex situ*), idéales pour la croissance ultérieure de barrières tunnel ultraminces [3]. Un exemple de coupe en section transverse réalisé sur une JTM CoFeB/MgO/CoFeB est présenté dans les figures 2.3-a) et 2.3-b). Pour toutes ces raisons, une intense activité de recherche a été consacrée à la caractérisation des matériaux CoFeB ces dernières années. D'un point de vue mécanique, c'est également ce caractère amorphe, donc *a priori* fragile, qui nous a guidé dans le choix de ces alliages. Plusieurs groupes de chercheurs ont déjà étudié les propriétés magnétiques ou magnétoélastiques de ces alliages lorsqu'ils sont déposés sur des substrats polymères. Cependant, bien que d'une grande importance, l'étude du comportement mécanique de ces alliages en grandes déformations fait toujours défaut.

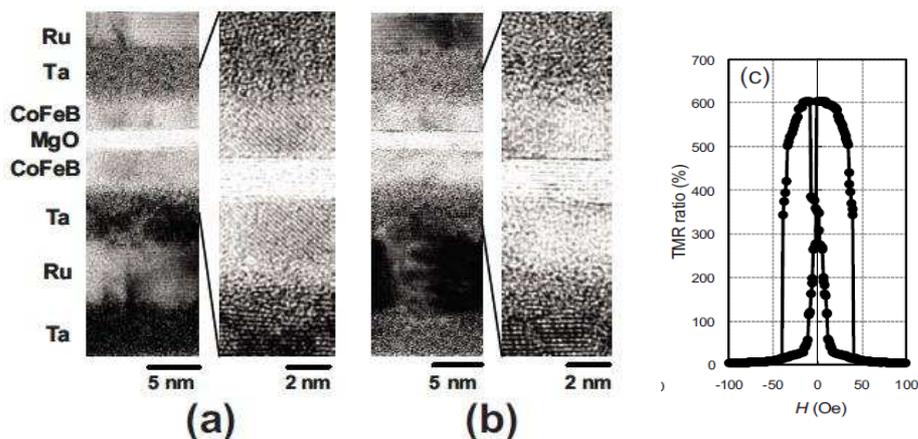


Figure 2.3 : Coupes transverses réalisées par microscopie électronique en transmission (HRTEM) d'une JTM CoFeB/MgO/CoFeB après recuit à 475 °C (a) et à 600 °C (b). c) Magnéto-résistance tunnel mesurée à 300 K de la même JTM après recuit à 525 °C [A].

Le choix des alliages NiFe est en quelque sorte un cas d'école. En effet, en faisant varier la composition de ces derniers, il est possible de moduler le coefficient de magnétostriction d'une valeur positive à négative, en passant par zéro pour la composition $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$. La courbe présentée en figure 2.4 illustre particulièrement cette modulation du coefficient de magnétostriction en fonction de la teneur en Nickel dans des films minces de $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$. Dans cette étude [4], les coefficients de magnétostriction ont été obtenus en mesurant la déflexion mécanique des échantillons lorsqu'un champ magnétique est appliqué (magnétostriction directe). Par ailleurs, ces alliages sont particulièrement prisés dans le domaine électromagnétique (notamment la composition $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$) car ils présentent d'excellentes propriétés micro-ondes (signal de résonance ferromagnétique très élevé) et qu'ils présentent un caractère assez doux d'un point de vue magnétique, l'anisotropie magnétocristalline du $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ est en effet également nulle. Durant cette thèse, nous nous sommes intéressés à deux compositions en particulier: $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$.

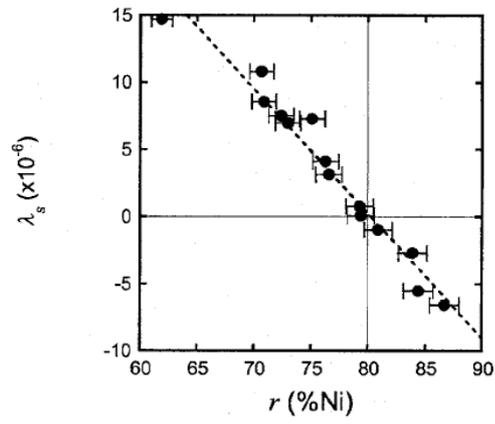


Figure 2.4 : Coefficient de magnétostriction à saturation de films minces (50 nm) de $Ni_{1-x}Fe_x$ en fonction de la concentration en Ni.

2. Dépôt des films minces magnétiques par pulvérisation magnétron

Les films minces magnétiques ont été déposés sur Kapton® par pulvérisation magnétron. Dans cette partie, nous présentons le principe général lié à cette technique et décrivons les différents films minces qui ont été élaborés.

2.1 Principe général

La pulvérisation magnétron est une technique de dépôt en phase vapeur, à l'aide d'un processus physique (Physical Vapor Deposition « PVD ») [5-6]. Ce processus consiste en la condensation d'une vapeur issue d'une source (cible) sur un substrat. Afin de parvenir à ce dépôt, on applique une différence de potentiel entre la cible et le substrat. Après introduction d'un gaz dans l'enceinte de dépôt, des collisions entre atomes de gaz et électrons à énergies suffisamment élevées vont provoquer une ionisation des premiers, tandis que ces collisions peuvent également exciter des atomes qui se désolvent en émettant un photon, photons responsables de la luminescence d'un plasma. Le champ électrique va attirer les ions gazeux vers la cible. En acquérant une énergie cinétique, au contact de la cible, un ou plusieurs atomes de celle-ci seront éjectés vers le substrat. Le principe de la pulvérisation magnétron (figure 2.5) est de placer des aimants sous la cible. Ainsi, le champ magnétique créé va permettre de piéger les électrons, au niveau des lignes de champ magnétique et va permettre le confinement du plasma au plus près de la cible. Il sera alors possible d'effectuer des dépôts en ayant recours à de faibles pressions. Ce dernier paramètre permet d'effectuer des dépôts denses. En effet, à forte pression, le libre parcours moyen des atomes de gaz est plus faible et les collisions sont donc plus fréquentes. Or, à chaque collision, les atomes de gaz cèdent une partie de leur énergie cinétique et leur trajectoire est déviée, ce qui *in fine* peut engendrer des porosités au sein des films élaborés.

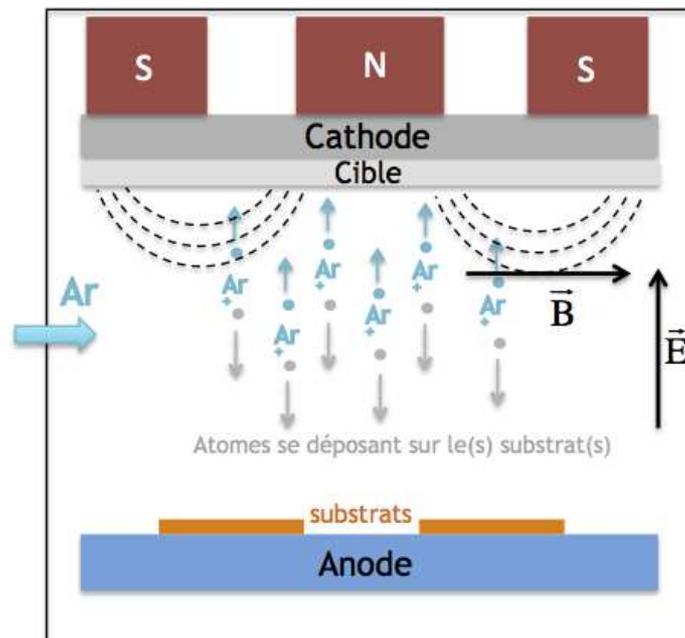


Figure 2.5: Schéma du dispositif magnétron utilisé pour le dépôt des films minces. Le jeu d'aimants permanents est représenté par les carrés rouges.

2.2. Elaboration des films minces sur substrat polymère

Les dépôts de nos films ont été réalisés à l'aide d'un bâti multi-cible de la société AJA International (figure 2.6-Gauche) [7]. La chambre de dépôt (50 litres) contient 6 porte-cibles qui possède chacun son propre volet et obturateur (figure 2.6-Droite). Cela permet de mieux contrôler les dépôts dans le cadre de l'élaboration de systèmes multicouches. Le substrat est quant à lui placé sur un support fixé par un arbre rotatif, cela permet d'effectuer des dépôts multi-cibles uniformes en composition chimique le long de l'épaisseur, et ceux en réglant la vitesse de rotation du substrat.



Figure 2.6: *Gauche:* Photo du bâti utilisé pour la réalisation des dépôts. *Droite:* Photo de l'intérieur du réacteur de dépôt montrant les six cibles visibles.

Les films minces ont été déposés sur des substrats de Kapton[®] de 125 μm d'épaisseur que l'on a découpé sous forme de carré de 3x3 cm^2 . Avant de placer ces substrats dans la chambre de dépôt, il est nécessaire de les nettoyer. En effet, les feuilles de Kapton[®] ont été manipulées lors de la découpe et compte tenu de leurs propriétés électrostatiques, elles ont tendance à capter des impuretés. Afin d'éviter toute contamination, un nettoyage de ces substrats a été effectué en salle blanche. Ils ont été immergés dans de l'isopropanol au sein d'un bécher et placés dans un bain à ultrasons pendant 10 minutes. Suite à quoi, ils ont été nettoyés en utilisant de l'eau distillée et un pistolet à azote, avant d'être stockés dans un boîtier en plastique propre. Nous avons réalisé des échantillons en faisant varier les épaisseurs des films minces de 5 à 100 nm. Les dépôts ont été réalisés sous vide (pression résiduelle de 2.10^{-8} Torr), à une pression d'argon de 1mTorr. Par la suite, nous avons obtenu plusieurs éprouvettes de largeur ~ 2 mm et de longueur 4 cm en découpant les échantillons originels (3x3 cm^2). Par ailleurs, les substrats ont une nouvelle fois été nettoyés à l'aide d'un plasma (plasma etching) ($\text{Ar}+\text{O}_2$) à 3 mTorr pendant 120 secondes juste avant le dépôt. Cela dans le but d'éliminer les éventuels résidus organiques et d'améliorer l'adhésion des films sur le substrat [8]. Nous avons utilisé trois cibles différentes: $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$. L'élaboration de films minces à partir de ces cibles est particulièrement bien maîtrisée par le groupe du professeur Adeyeye, la composition des films ainsi élaborés est très proche de la composition des cibles.

3. Fabrication des réseaux de nanolignes

Des réseaux de nanolignes constituées des mêmes matériaux que ceux utilisés pour les films minces ont été fabriqués. Nous avons pour cela utilisé une technique de nanolithographie optique (interférence lithography) [9-10]. L'avantage principal des techniques de lithographie optique, par rapport par exemple à la lithographie électronique, est qu'elles permettent l'obtention de réseaux de grandes tailles ($0,5 \times 0,5 \text{ cm}^2$ dans notre cas) [10]. Cela conduit par ailleurs à un rapport signal sur bruit suffisamment important en résonance ferromagnétique. Ainsi, nous avons prédécoupé des bandes de Kapton® de largeur 0,6 cm et de longueur 4 cm qui serviront d'éprouvettes par la suite. Il est à noter que les réseaux de nanolignes ont été fabriqués sur une zone d'environ $0,25 \text{ cm}^2$ qui est situé au centre de ces bandes.

La lithographie par interférence est une technique de nanofabrication sans masque, dont le principe implique l'utilisation de figures interférentielles, générées à partir de deux faisceaux incidents et obliques (faisceaux direct et réfléchi), sur une résine photosensible (Ultra-i 123™ Positive Photoresist de la société Dow® dans notre cas). La première étape consiste donc, après avoir nettoyer le substrat Kapton® de la même manière que pour les films minces, à déposer une couche de résine photosensible par dépôt centrifuge (spin coating). Après plusieurs essais, nous avons déposé une épaisseur de 20 nm de cette résine (dépôt centrifuge pendant 45 secondes à 6000 tours par minute).

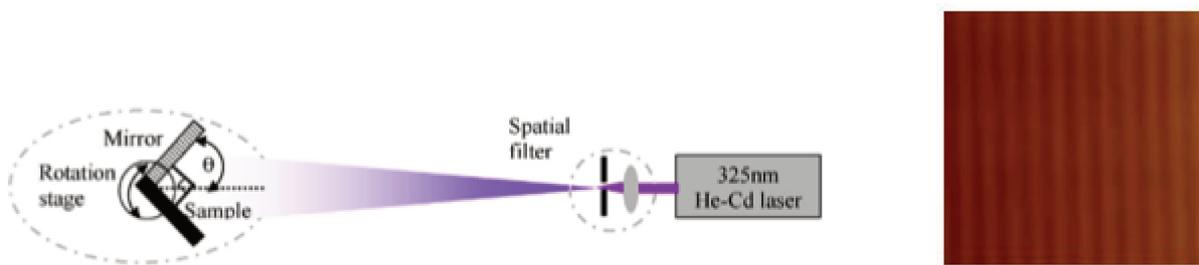


Figure 2.7: *Gauche:* Schéma du principe de lithographie par interférence [10]. *Droite:* Image montrant une figure d'interférence générée à la surface d'un substrat de Kapton® après avoir développé la résine.

Le schéma du principe de la lithographie par interférence est présenté sur la figure 2.7 [10]. Pour générer des franges d'interférences sur la surface de la résine photosensible, le substrat est placé sur un bras d'un interféromètre à miroir de Lloyd. Le deuxième bras de l'interféromètre contient un miroir carré en aluminium. L'angle entre les deux bras est de 90° . Les deux bras de l'interféromètre sont exposés à un faisceau continu de 325 nm généré par un laser hélium-cadmium (He-Cd). Le faisceau laser est focalisé par le biais d'une lentille dans un trou de $10 \mu\text{m}$ de diamètre qui aide à éliminer le bruit et permet de fournir un profil Gaussien au faisceau. Après avoir traversé ce filtre spatial, le faisceau se propage vers l'échantillon. La lumière du faisceau source interfère avec la lumière réfléchi par le miroir pour former un motif d'ondes stationnaires avec des maxima et des minima d'intensités alternées. La périodicité de cette alternance est égale à $p = \lambda/2 \sin \theta$. Elle est proportionnelle à la demi-longueur d'onde ($\lambda/2$) du laser et est inversement proportionnelle au sinus de l'angle θ relatif des deux faisceaux. Par la suite, la résine photosensible exposée a été développée à l'aide d'une solution de CD-26 de la société MicroChem [11] pendant 45 secondes et les échantillons ont finalement été rincés à l'aide d'eau distillée et séchés en utilisant un pistolet à azote. Une image d'un exemple typique de résine développée est présentée sur la figure 2.7. Il est important de noter que les nanolignes sont alignées le long de l'éprouvette. En effet, pour des raisons d'encombrement géométrique,

il n'a pas été possible de fabriquer des réseaux de nanolignes perpendiculairement à l'éprouvette. Ainsi, il ne sera possible d'appliquer une contrainte que parallèlement à ces nanolignes. Par la suite, nous avons réalisé les mêmes dépôts que pour les films minces en utilisant les mêmes conditions de dépôts mais en se limitant à une épaisseur de 20 nm. L'étape finale consiste à se débarrasser totalement de la résine photosensible; on obtient ainsi nos réseaux de nanolignes magnétiques sur substrat Kapton®. Les différentes étapes de la fabrication de ces réseaux de nanolignes sont résumées sur la figure 2.8. La photo de droite présente deux morceaux de substrats prédécoupés à 3×3 cm² pour le dépôt des films minces et trois morceaux prédécoupés à 4×0,6 cm² pour la réalisation des réseaux de nanolignes. Des masques en aluminium ont été réalisés et collés par dessus ces derniers morceaux afin de déposer les matériaux que sur la partie qui a été soumise aux interférences. Tous ces morceaux sont maintenus soit par des pinces, soit en utilisant un scotch Kapton®. Enfin, des images obtenues par microscopie électronique à balayage d'un réseau de nanolignes de Ni₆₀Fe₄₀ sur Kapton® sont présentées sur la figure 2.9. Ces images permettent une mesure précise de la période de nos réseaux. Ainsi, l'ensemble des réseaux de nanolignes élaborés dans le cadre de cette thèse présente une période d'environ 600 nm (200 nm d'espacement entre les nanolignes de 400 nm de largeur).

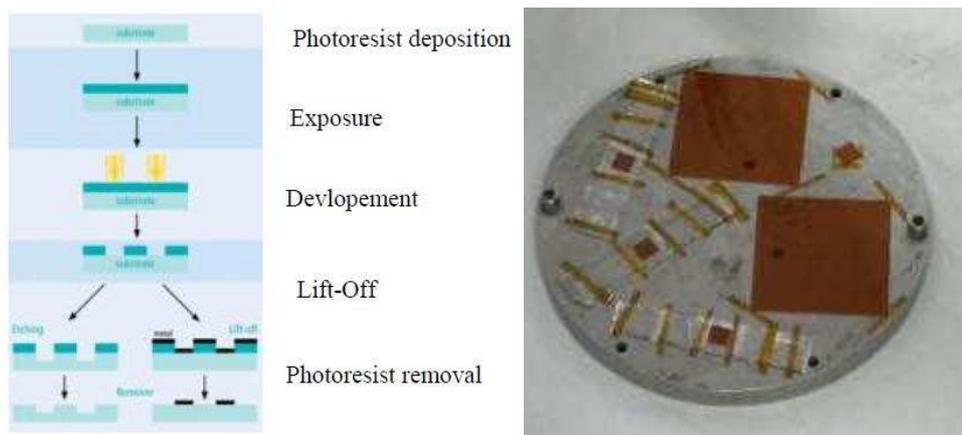


Figure 2.8: *Gauche:* Présentation des différentes étapes permettant la fabrication de réseaux de nanolignes sur substrat polymère. *Droite:* Photo présentant deux morceaux de substrats prédécoupés à 3×3 cm² pour le dépôt des films minces et trois morceaux prédécoupés à 4×0,6 cm² pour la réalisation des réseaux de nanolignes.

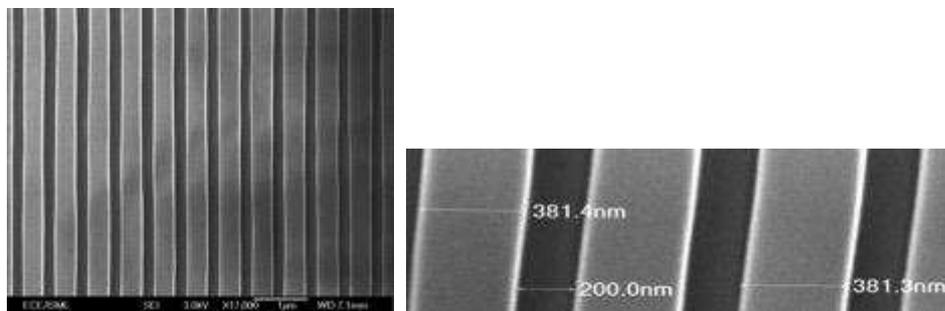


Figure 2.9: Images de microscopie électronique à balayage d'un réseau de nanolignes de Ni₆₀Fe₄₀.

4. Essais sur PDMS

En plus des dépôts sur Kapton®, nous avons essayé de déposer les mêmes films et réseaux de nanolignes sur un substrat élastomère, le PDMS (PolyDiMéthylSiloxane). L'idée étant d'observer le caractère réversible des comportements mécanique et magnéto-mécanique car ce polymère présente un régime élastique qui s'étale jusqu'à quelques 100% (de manière non linéaire). Par ailleurs, de nombreuses études ont montré que le PDMS pouvait être biocompatible. Néanmoins, après élaboration, la caractérisation de la surface de ces échantillons par microscope optique a montré que les films et nanolignes déposés sur PDMS, montre des irrégularités, plusieurs fissures, et des décollements (figure 2.10). Cela s'explique par la faible énergie de surface du PDMS par rapport à celle du Kapton®. En raison de ces défauts, nous avons limité nos différentes études aux seuls échantillons déposés sur Kapton®.

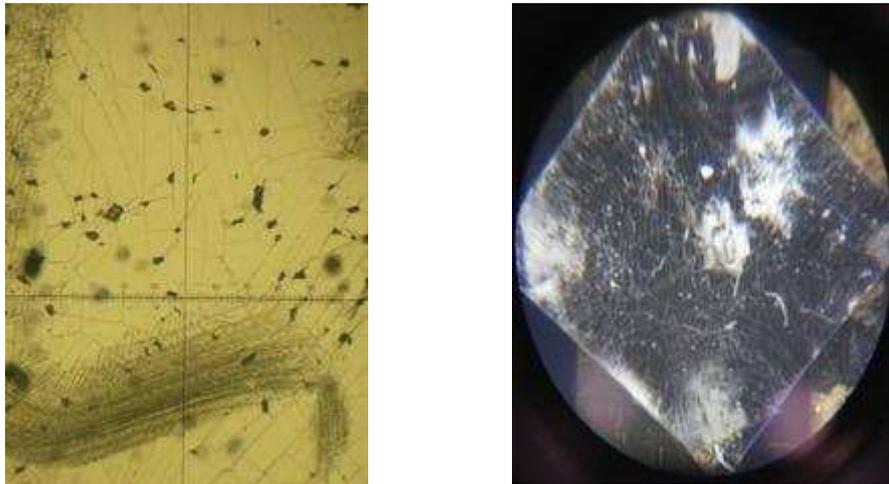


Figure 2.10: Images obtenues par microscopie optique de la surface d'un film de CoFeB déposé sur PDMS.

Bibliographie

- [1] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y.M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M.Tsunoda, F. Matsukura, H. Ohno, "Tunnel magnetoresistance of 604% at 300K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature", *Applied Physics Letters* 93, 082508 (2008).
- [2] J.M. Teixeira, R.F. A. Silva, J. Ventura, A.M. Pereira, F.Carpinteiro, J.P. Araujo, J.B. Sousa, S. Cardoso, R. Ferreira, P.P. Freitas, "Domain imaging, MOKE and magnetoresistance studies of CoFeB films for MRAM applications", *Materials Science and Engineering: B* 126, 180 (2006).
- [3] T. Dimopoulos, G. Gieres, J. Wecker, N. Wiese, M. D. Sacher, "Thermal annealing of junctions with amorphous and polycrystalline ferromagnetic electrodes", *Journal of Applied Physics* 96, 6382 (2004).
- [4] R. Bonin, M. L. Schneider, T. J. Silva, J. P. Nibarger, "Dependence of magnetization dynamics on magnetostriction in NiFe alloys", *Journal of Applied Physics* 98, 123904 (2005).
- [5] S. Swann, "Magnetron Sputtering", *Physics in Technology* 19, 67 (1988).
- [6] P. J. Kelly and R.D. Arnell, "Magnetron sputtering: a review of recent developments and applications", *Vacuum* 56, 159 (2000).
- [7] <http://www.ajaint.com/sputtering-systems.html>
- [8] D. F. O'Kane and K. L. Mittal, "Plasma cleaning of metal surfaces", *Journal of Vacuum Science and Technology* 11, 567 (1974).
- [9] H. van Wolferen and L. Abelmann, "Laser Interference Lithography", In: *Lithography: Principles, Processes and Materials*, Ed. Theodore C. Henessy ISBN: 978-1-61761-837-6 (2011).
- [10] Q. Xie, M.H. Hong, H.L. Tan, G.X. Chen, L.P. Shi, T.C. Chong, "Fabrication of nanostructures with laser interference lithography" *Journal of Alloys and Compounds* 449, 261 (2008).
- [11] http://microchem.com/products/images/uploads/MF_CD_26_Data_Sheet.pdf

Chapitre 3

Méthodologies expérimentales

Sommaire

1 Essai de traction

1.1 Description théorique de nos essais de traction

1.1.1 Traction d'un film supporté en élasticité linéaire

1.1.2 Au delà de l'élasticité linéaire : fissuration et décohésion des films minces

1.2 Montage permettant l'étude *in situ* de l'apparition des fissures et des décohésions

1.2.1 Machine de traction et éprouvettes

1.2.2 Suivi *in situ* par microscopie à forces atomiques

1.2.3 Mesure *in situ* de la résistivité

2 La résonance ferromagnétique

2.1 Théorie du micromagnétisme

2.1.1 Les différents termes d'énergies

2.1.2 Dynamique de l'aimantation

2.2 Aspect instrumental de la résonance ferromagnétique

2.2.1 Principe de base

2.2.2 Montage expérimental

2.2.3 Focus sur la cellule d'excitation et la technique de modulation

Ce chapitre est consacré à la présentation des méthodologies employées afin d'étudier les propriétés magnétiques et mécaniques des films minces et nanostructures présentés au chapitre précédent. L'objectif principal étant d'étudier l'influence de l'application de grandes déformations mécaniques sur leurs propriétés magnétiques, nous avons utilisé une machine de traction en faisant appel à la résonance ferromagnétique. En effet, durant cette thèse, les déformations mécaniques ont été appliquées par le biais d'une mini-machine de traction Deben® alors que l'influence de ces déformations sur les propriétés magnétiques a été sondée en utilisant un banc de résonance ferromagnétique large bande. Les descriptions techniques de cette mini-machine et du banc de résonance ferromagnétique sont présentées dans ce chapitre. A cette occasion, nous rappelons quelques éléments de mécanique et de la théorie du micromagnétisme.

1. Essai de traction

Dans cette section, nous abordons les descriptions théoriques et expérimentales des essais de traction uniaxiaux réalisés sur nos différents systèmes. A cette occasion, nous commençons par présenter le problème « classique » d'un système film/substrat en traction dans le cadre de l'élasticité linéaire, c'est à dire jusqu'à environ 1% de déformation. Nous avons vu dans le chapitre introductif qu'au delà de quelques pourcents apparaissent des fissures perpendiculairement à la traction uniaxiale et dont l'espacement dépend des paramètres mécaniques et géométriques des éprouvettes étudiées. C'est ce que nous verrons dans une sous-section dédiée à la fissuration et à la décohésion des films minces. Dans une seconde partie, nous donnerons quelques éléments techniques de la mini-machine de traction que nous avons utilisée durant cette thèse ainsi que de la microscopie à forces atomiques utilisée quant à elle pour visualiser *in situ* l'apparition et la multiplication des fissures et des décohésions. Enfin, nous finirons cette section par la présentation des mesures de résistivité que nous avons réalisées sur certains systèmes.

1.1 Description théorique des essais de traction

1.1.1 Traction d'un film supporté en élasticité linéaire

Nous allons traiter du problème assez classique d'un système composite film/substrat soumis à une traction uniaxiale en élasticité linéaire [1,2]. Les paramètres géométriques de ce système sont présentés dans la figure 3-1. Ainsi, connaissant la contrainte σ^{tot} appliquée au composite film/substrat, le but est de déduire les contraintes appliquées au sein du film (σ_{11}^f , σ_{22}^f). En effet, pour un chargement uniaxial du composite film/substrat, l'état de contrainte au sein du film n'est pas uniaxial du fait de la différence éventuelle entre les coefficients de Poisson du film et celui du substrat. Pour un matériau isotrope, la loi de Hooke relie linéairement les composantes du tenseur des déformations aux composantes du tenseur des contraintes dans le domaine élastique [3]:

$$\varepsilon_{ij} = \left(\frac{1 + \nu}{E} \right) \cdot \sigma_{ij} - \frac{\nu}{E} \cdot (\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})$$

Où ν est le coefficient de Poisson du milieu considéré. Les déformations du film non nulles résultantes de cet état de contrainte sont donc ε_{11}^f , ε_{22}^f , ε_{33}^f . Ainsi, les tenseurs des déformations et des contraintes pour le film peuvent alors s'écrire sous la forme suivante :

$$\bar{\bar{\varepsilon}}_f = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11}^f & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{22}^f & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33}^f \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \bar{\bar{\sigma}}_f = \begin{pmatrix} \sigma_{11}^f & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{22}^f & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{33}^f \end{pmatrix}$$

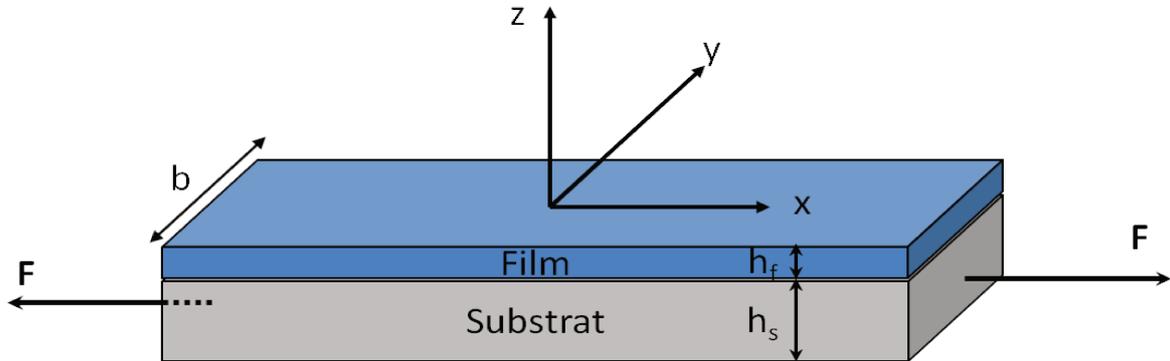


Figure 3.1: Représentation du système composite film/substrat. Les différentes dimensions et le référentiel de mesure des déformations et des contraintes sont présentés.

On suppose que l'interface est infiniment fine en négligeant la présence de cisaillement (interface parfaite). Le déplacement à travers cette interface reste ainsi inchangé. A l'équilibre mécanique, les déformations du film et du substrat sont égales dans le plan parallèle à la surface (x,y) :

$$\begin{cases} \varepsilon_{11}^s = \varepsilon_{11}^f \\ \varepsilon_{22}^s = \varepsilon_{22}^f \end{cases}$$

La loi de Hooke permet d'exprimer ces égalités en termes de contraintes :

$$\begin{cases} \frac{1}{E_s} (\sigma_{11}^s - \nu_s \sigma_{22}^s) = \frac{1}{E_f} (\sigma_{11}^f - \nu_f \sigma_{22}^f) \\ \frac{1}{E_s} (\sigma_{22}^s - \nu_s \sigma_{11}^s) = \frac{1}{E_f} (\sigma_{22}^f - \nu_f \sigma_{11}^f) \end{cases}$$

Ou encore :

$$\begin{cases} \frac{1 - \nu_s}{E_s} (\sigma_{11}^s + \sigma_{22}^s) = \frac{1 - \nu_f}{E_f} (\sigma_{11}^f + \sigma_{22}^f) \\ \frac{1 + \nu_s}{E_s} (\sigma_{11}^s - \sigma_{22}^s) = \frac{1 + \nu_f}{E_f} (\sigma_{11}^f - \sigma_{22}^f) \end{cases}$$

De plus, si l'on projette la force totale appliquée F au composite film/substrat selon x et y (F_x et F_y), et en assumant que la force totale appliquée dans une direction est la somme de la force appliquée au film et de la force appliquée au substrat dans cette direction, on obtient selon la direction x :

$$F_x = F_x^f + F_x^s = F$$

Soit en fonction des contraintes :

$$\sigma_{11}^f f_f + \sigma_{11}^s f_s = \sigma^{tot}$$

Il en est de même selon y : $F_y = F_y^f + F_y^s = 0$ et $\sigma_{22}^f f_f + \sigma_{22}^s f_s = 0$

Nous avons introduit les fractions volumiques du film et du substrat, f_f et f_s , qui sont données par :

$$\begin{cases} f_f = \frac{h_f}{h_f + h_s} \\ f_s = \frac{h_s}{h_f + h_s} \end{cases}$$

Les équations forment alors un système de quatre équations à quatre inconnues ($\sigma_{11}^f, \sigma_{22}^f, \sigma_{11}^s, \sigma_{22}^s$), avec E_f et ν_f comptées brièvement parmi celles-ci. En résolvant ce système, les contraintes appliquées dans le film ($\sigma_{11}^f, \sigma_{22}^f$) peuvent être exprimées en fonction de la contrainte totale σ^{tot} appliquée au composite film/substrat, des coefficients d'élasticité du film (E_f, ν_f) et du substrat (E_s, ν_s), et des fractions volumiques du film f_f et du substrat f_s :

$$\sigma_{11}^f = \frac{\sigma^{tot} \cdot E_f [E_s f_s (-1 + \nu_f \nu_s) + E_f f_f (-1 + \nu_s^2)]}{E_s^2 f_s^2 (-1 + \nu_f^2) + 2E_f E_s f_f f_s (-1 + \nu_f \nu_s) + E_f^2 f_f^2 (-1 + \nu_s^2)}$$

$$\sigma_{22}^f = \frac{\sigma^{tot} \cdot E_f E_s f_s (\nu_s - \nu_f)}{E_s^2 f_s^2 (-1 + \nu_f^2) + 2E_f E_s f_f f_s (-1 + \nu_f \nu_s) + E_f^2 f_f^2 (-1 + \nu_s^2)}$$

Dans le cas où le coefficient de Poisson du film est sensiblement le même que celui du substrat, nous retrouvons une valeur nulle de σ_{22}^f et l'expression de σ_{11}^f en est simplifiée.

A titre d'exemple, une force de 1N appliquée à un système composé d'un film de CoFeB de 20nm et d'un substrat de Kapton® de 125 microns, pour une largeur d'échantillon de 2mm, amène à une contrainte uniaxiale dans le film de 80 MPa environ. Ces expressions sont valables seulement dans le cas d'un système film/substrat dans lequel les matériaux sont macroscopiquement isotropes dans le plan (x, y), ce qui est le cas de l'ensemble des systèmes étudiés durant cette thèse.

1.1.2 Au delà de l'élasticité linéaire : fissuration et décohésion des films minces

On s'intéresse maintenant à la mécanique de la rupture du système composite film/substrat en gardant les mêmes notations que ceux de la figure 3.1. Il est important de noter que nos systèmes composites sont caractérisés par le fait que l'épaisseur du film est infiniment plus petite que celle du substrat ($h_f \ll h_s$). Compte tenu de l'ordre de grandeur des modules de Young du substrat et des films minces métalliques, nous pouvons également faire l'hypothèse suivante : ($E_f h_f \ll E_s h_s$). Les contraintes résiduelles issues du dépôt d'un film mince sur un substrat peuvent être à l'origine de la propagation de fissures au sein du film ou même dans certains cas au sein du substrat. L'origine de ces contraintes résiduelles est multiple : cela peut provenir de la différence entre les paramètres de maille du film et du substrat lorsque celui-ci est cristallin, de la différence des coefficients de dilatation thermique entre film et substrat. Un exemple dans la vie de tous les jours peut se voir au travers des peintures qui faïence, cela est dû en partie à la différence des coefficients de dilatation thermique entre la peinture et le mur qui entraîne des contraintes de traction au sein de la couche de peinture, qui *in fine*, finissent par conduire à la rupture de celle-ci.

Le cas des films minces déposés sur substrats polymères et soumis à de grandes déformations est très étudié expérimentalement et théoriquement [4-11]. Nous avons vu dans le chapitre introductif que les applications industrielles principales concernaient l'électronique flexible, une des idées étant de conserver les propriétés fonctionnelles (comme la conductivité électrique ou la distribution des moments magnétiques) du film mince lorsque le système film/substrat est soumis à de grandes déformations. D'un point de vue plus fondamental, l'étude de la fissuration de ces systèmes constitue une méthode prometteuse pour caractériser les propriétés mécaniques des films minces. En effet, il est par exemple possible de déterminer les modules élastiques, la ténacité ou l'énergie d'adhésion d'un film à partir de l'observation de la propagation de fissures lorsque le système est soumis à une traction uniaxiale [4]. Une des premières études expérimentales de la fragmentation de films minces sur polymère a été réalisée par microscopie optique [5]. Cette étude a été réalisée sur des films de verres de 100 nm d'épaisseur déposés sur PET. Les images de microscopie optique obtenues durant cette étude sont présentées sur la figure 3.2. On voit qu'au delà d'une déformation critique ($\varepsilon_c \sim 1\%$), des fissures apparaissent dans le film. Les fissures se propagent perpendiculairement à la direction de sollicitation et traversent la largeur de l'échantillon. A environ 6% de déformations, on observe l'apparition de fissure transverse (qui sont en fait des décohésions du film) que les auteurs attribuent à la contraction latérale du film dû à l'effet Poisson. Nous verrons que les films minces de CoFeB sur Kapton® que nous avons étudié présente un comportement proche de ce système. De nombreuses autres études ont été menées depuis en utilisant différents types de microscopies. La figure 3.3 présente quelques images de microscopie électronique à balayage et à forces atomiques de films minces de Cu et de Cr déposés sur substrat polymère et déformés en grandes déformations. On observe différentes morphologies de fissures (zigzag caractéristique d'un comportement ductile, droite caractéristique d'un comportement fragile) et de décohésions (fissures transverses).

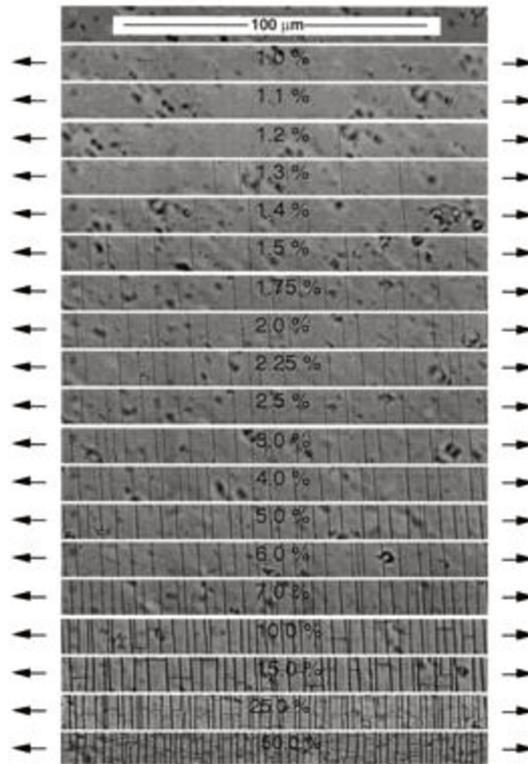


Figure 3.2 : Images de microscopie optique de la fragmentation d'un film de $\text{SiO}_{1.66}$ déposé sur un substrat polymère (PET) et soumis à différentes déformations (1% à 50%). On observe clairement la multiplication des fissures et la décohésion du film.

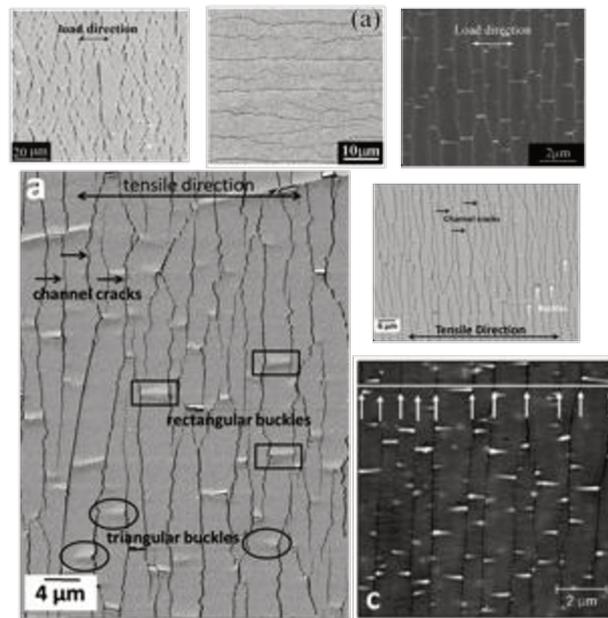


Figure 3.3 : En haut de gauche à droite : Fissuration en zigzag d'un film de Cu déposé sur substrat polyimide tiré à 30% [6]. Fissuration à 20% d'un film Cu de 60 nm d'épaisseur [7]. Fissuration d'un film de Cr sur Kapton® de 10 nm d'épaisseur après 20% de déformation [8]. En bas à gauche, mise en évidence de la fissuration perpendiculaire à l'axe de traction et délamination, avec différentes formes de cloques, parallèle à celui-ci dans le cas d'un film déposé sur substrat flexible [9]. Puis à droite de haut en bas, Image MEB d'un film Cr de 100 nm sur polyimide après 13% de déformation [10] et image AFM d'un film Cr de 10 nm tiré à 13.4 % [11].

1.2 Montage permettant l'étude *in situ* de l'apparition des fissures et des décohésions

Cette sous-section est dédiée à la présentation de quelques éléments techniques de la mini-machine de traction utilisée pour appliquer de grandes déformations à nos systèmes, de la microscopie à forces atomiques (AFM) utilisée pour suivre l'évolution de la multifissuration et du montage permettant de mesurer la résistance électrique de nos systèmes en fonction de la déformation appliquée.

1.2.1 Machine de traction et éprouvette

Les essais de traction ont été effectués à l'aide d'une mini-machine de traction de la société anglaise DebenTM [12]. Cette machine (voir figure 3.4) est équipée d'un capteur de force interchangeable (75 N et 300 N) permettant de maîtriser la force appliquée à l'ensemble film/substrat et d'un moteur pas à pas permettant d'appliquer un déplacement aux échantillons. La résolution du capteur de force est d'environ 0,1 N. Les éprouvettes « films minces », 3 cm de long et 0,2 cm de large ont été découpées à partir des échantillons initiaux issus du dépôt ($3 \times 3 \text{ cm}^2$). Les éprouvettes « nanolignes » font 4 cm de long et 0,6 cm de large.

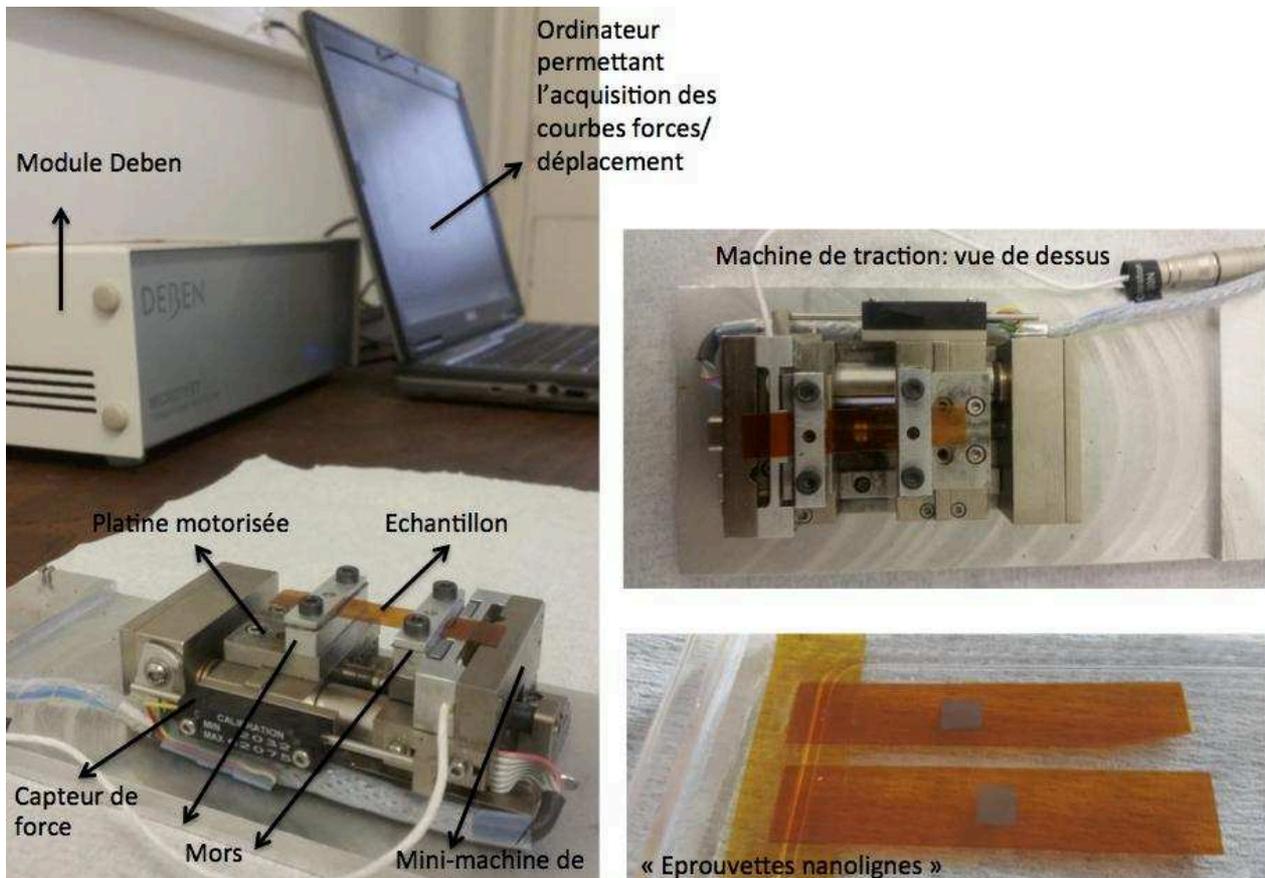


Figure 3.4 : Photographies de la mini-machine de traction DebenTM utilisée durant cette thèse et d'éprouvettes « nanolignes » typiques.

Comme nous l'avons dit précédemment, les réseaux de nanolignes ne sont présents qu'au centre de ces éprouvettes, comme le montre une des photographies de la figure 3.4 . Les extrémités de ces éprouvettes sont placées entre deux platines au niveau de leurs deux extrémités que l'on sert à l'aide de vis inoxydables (voir figure 3.4). Nous avons réalisé différents essais de traction, certains *in situ* sous AFM et d'autres que nous appelons *ex situ* (car

l'observation par AFM ne s'est pas faite *in situ*). Afin de laisser la tête de l'AFM atteindre la surface des échantillons, les éprouvettes pour les essais *in situ* ont une longueur utile de 17 mm alors qu'elle n'est que de 8 mm pour les essais *ex situ*. Enfin, les différents échantillons sont soumis à des essais de traction uniaxiaux à faible vitesse de sollicitation ($\sim 0.1\%/s$).

1.2.2 Suivi *in situ* par microscopie à forces atomiques

Principe de base

La microscopie à forces atomiques permet de sonder les forces entre une pointe ultrafine et un échantillon. Ce type de microscope est apparu dans les années 1980 [13]. La tête de mesure est composée d'un microlevier qui, sous l'action d'une force appliquée à son extrémité se déforme. Un système de détection optique permet de mesurer les déflexions verticales et latérales du levier. Notre microscope peut fonctionner en mode contact ou en mode intermittent. En mode contact, la pointe est placée en contact avec la surface. La force d'interaction entre la pointe et la surface est évaluée en mesurant la déflexion verticale du levier. Cette dernière l'est *via* le faisceau d'une diode laser focalisé sur l'extrémité du levier, l'autre extrémité du levier étant encastrée. Le faisceau est alors réfléchi vers une diode photodéetectrice sensible à la position. La déflexion du levier provoque un déplacement du faisceau réfléchi sur la diode et donc une variation de la tension mesurée sur la diode photodéetectrice. En notant E le module d'Young, L la longueur, d la largeur et h l'épaisseur du levier, le déplacement u_L de l'extrémité libre du levier subissant une force F s'exprime sous la forme :

$$u_L = 4 \frac{F L^3}{E h^3 d}$$

Ainsi, l'angle θ_L que fait l'extrémité libre du levier est égale à :

$$\theta_L = 6 \frac{F L^2}{E h^3 d}$$

La déviation du faisceau frappant cette extrémité vaut 2θ ; c'est cet angle qui est mesurée par la diode. Au cours du balayage horizontal de l'échantillon, ce signal de déflexion est comparé dans l'unité de contrôle à un signal de référence. Une boucle de rétroaction ajuste en continu la position verticale de la tête afin d'annuler cette différence, c'est à dire afin de maintenir la force d'interaction constante. En mode intermittent est employé pour réaliser des images sans endommager la surface et la pointe. Dans ce mode, un piézoélectrique bimorphe est placé à la base du levier et induit une vibration de celui-ci, à une fréquence proche de sa fréquence de résonance. L'amplitude de vibration du levier est mesurée *via* le photodéetecteur. Lorsque la pointe s'approche de la surface, les forces d'interactions attractives ou répulsives pointe-surface vont provoquer une variation à la fois de l'amplitude et de la phase de la vibration. Au cours d'un balayage, l'amplitude est maintenue constante en adaptant la hauteur de la tête grâce à une boucle de rétroaction. En enregistrant la hauteur de la tête, on peut obtenir une image topographique.

Montage expérimental

Durant les observations *in situ*, la machine de traction est évidemment placée sous la tête du microscope (Veeco D3100). Pour des raisons d'encombrement géométrique, nous avons dû

concevoir une platine d'adaptation afin que la machine puisse loger sous la tête du microscope. Les pointes utilisées pour les acquisitions d'image en mode tapping, sont de type PPP-NCHR, alors que celles utilisées pour le mode contact étaient de type PPP-CONTR, il s'agit de pointes en silicium dopés N^+ . La figure 3.5 présente une photographie du dispositif machine/microscope. L'acquisition d'une image topographique avec notre microscope peut prendre entre une minute et une heure. Cela dépend de plusieurs paramètres dont les principaux sont le choix du nombre de pixels de l'image finale et le choix de la vitesse de balayage de la pointe. Une image prise en une minute n'est que peu exploitable car la résolution est alors médiocre. Compte tenu du nombre important d'images nécessaires à la caractérisation d'un seul échantillon, nous avons décidé de réaliser des images d'une durée d'environ 20 minutes, alors que la résolution choisie dans le cadre de l'acquisition de nos images AFM était de 896×896 ou de 1024×1024 . Compte tenu de ce temps relativement long pour la prise d'une image, nous n'avons pas pu suivre la cinétique de l'apparition des fissures. La méthodologie que nous avons adoptée consiste à imposer un déplacement donné (une déformation) à l'échantillon, à réaliser une image AFM de la topographie de la surface, puis à réimposer un déplacement plus grand et ainsi de suite.

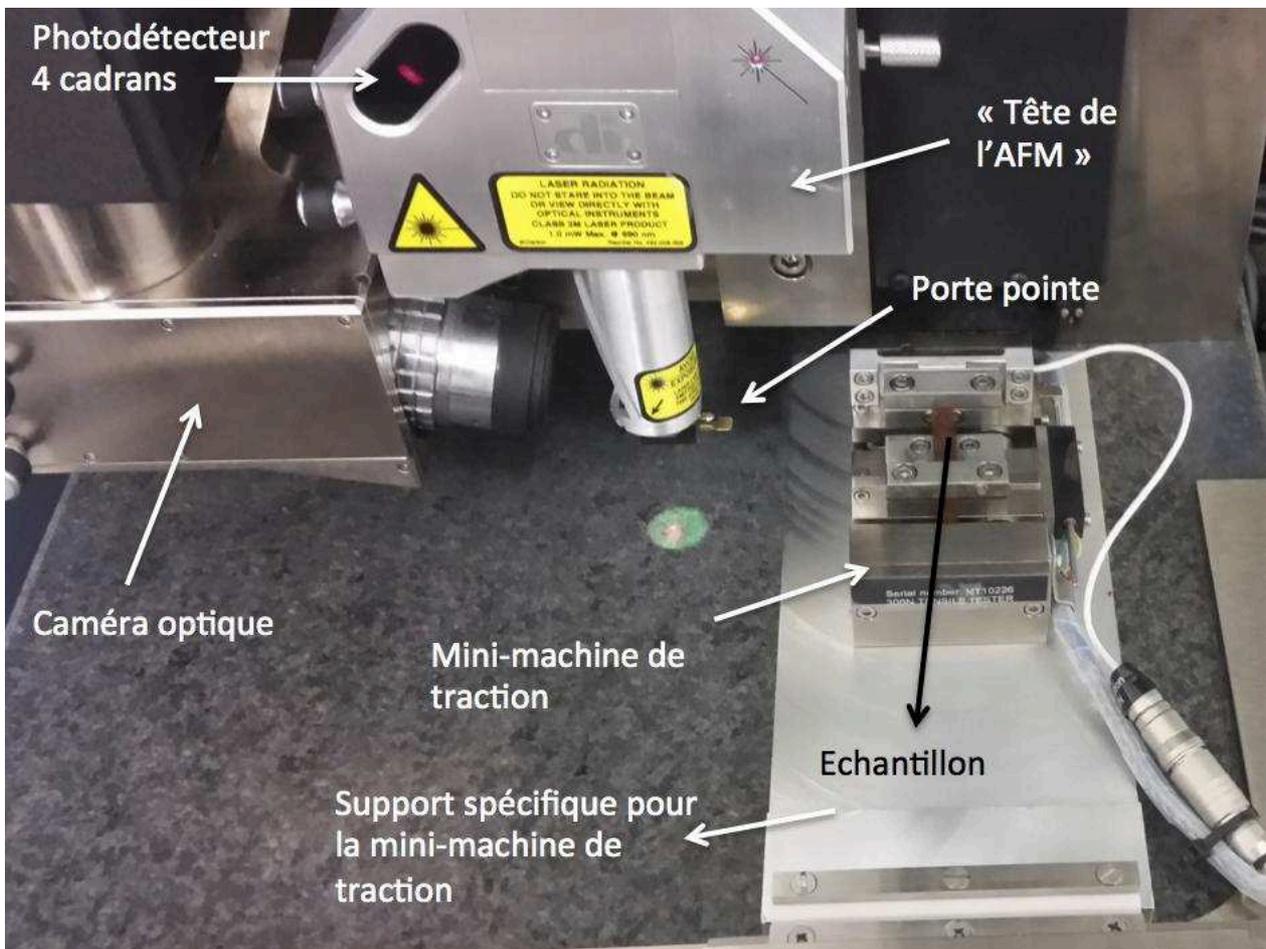


Figure 3.5 : Photographie du dispositif expérimental utilisé pour les essais de traction *in situ* permettant de visualiser la tête de l'AFM, la caméra optique de l'AFM permettant de choisir une région sur les échantillons, le photodétecteur à 4 cadrans et la mini-machine accompagnée de son support spécifique.

La figure 3.6 présente un exemple de courbe force-déplacement enregistrée à partir d'une expérience menée sur un échantillon constitué d'un film mince de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ sur Kapton®. Des images AFM ont été enregistrées tous les 1% de déformation. Connaissant la section du système, il est possible de convertir cette courbe en contrainte-déformation, comme illustré par la figure 3.6. La contrainte σ étant simplement déterminée par le rapport entre la force mesurée et la section de l'échantillon (2 mm dans ce cas).

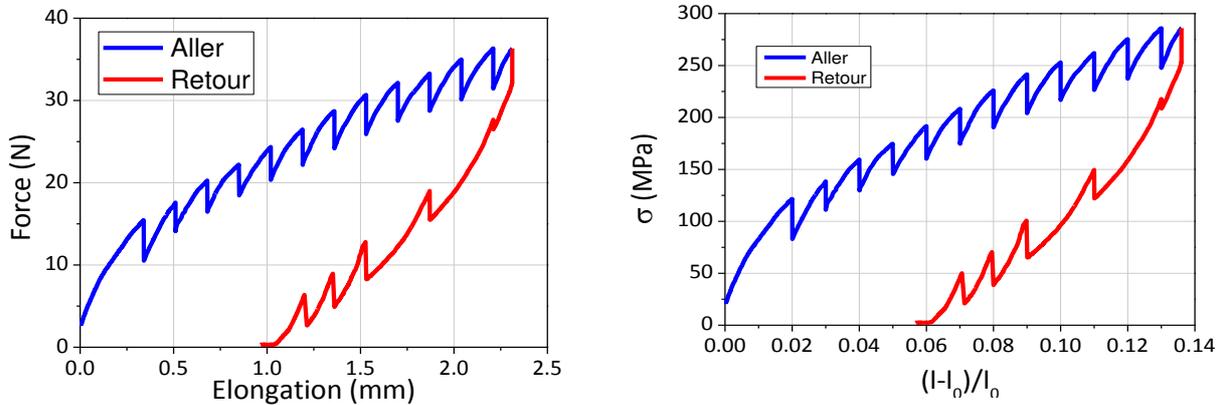


Figure 3.6 : Exemple de courbe force-déplacement (a) et contrainte-déplacement (b) obtenu

Par ailleurs, bien que le système soit composite (film/substrat), on peut considérer que la contribution du film est expérimentalement négligeable sur cette courbe de traction. Cette hypothèse se justifie par la faible valeur de la fraction volumique du film par rapport à celle du substrat. Il est par ailleurs intéressant de noter que la force mesurée par le biais du capteur de force diminue à chaque fois que l'on réalise une image AFM. Cela est dû à la relaxation viscoélastique du Kapton® [14]. Cette relaxation est assez rapide (quelques secondes) et n'évolue quasiment pas durant la (ou les) prise d'image AFM. On observe par ailleurs que lors du retour, la force diminue beaucoup plus vite qu'elle n'a augmentée à l'aller. Celle-ci s'annule pour une valeur de déformation initiale égale à environ 6%. Cela est dû au fait que l'on a dépassé la limite d'élasticité (environ 5%) du Kapton® [14]. Les valeurs des déformations ont été calculées à partir de l'élongation entre les mors de la machine. La longueur de l'échantillon l_0 correspond à la longueur dite utile (celle entre les mors de la machine). Les valeurs de Δl ont été déterminées à l'aide de l'équation suivante:

$$\ln(1 + \varepsilon) = \varepsilon \quad (\varepsilon \rightarrow 0) = \Delta l = \frac{l - l_0}{l_0}$$

Compte tenu de la grande longueur utile de départ ($l_0 = 17$ mm) afin de laisser la tête du microscope atteindre la surface de l'échantillon, il n'est possible d'imposer au maximum qu'environ 14% de déformation aux systèmes étudiés. Enfin, il est important de noter que les images ont été enregistrées en réalisant un balayage de la pointe parallèlement à la traction imposée, c'est à dire perpendiculairement aux fissures. Cela est dû à la moins bonne résolution des images obtenues lorsque la pointe effectue un balayage parallèlement aux fissures, notamment dans le cas des réseaux de nanolignes. A cet égard, la figure 3.7 présente deux images AFM enregistrées sur une même région d'un échantillon de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ sur Kapton®. On voit clairement l'influence de la direction de balayage de la pointe sur les images obtenues. En effet, sur l'image gauche (balayage perpendiculaire à la traction), les fissures ne sont pas ou très peu visibles.

Direction de balayage de la pointe

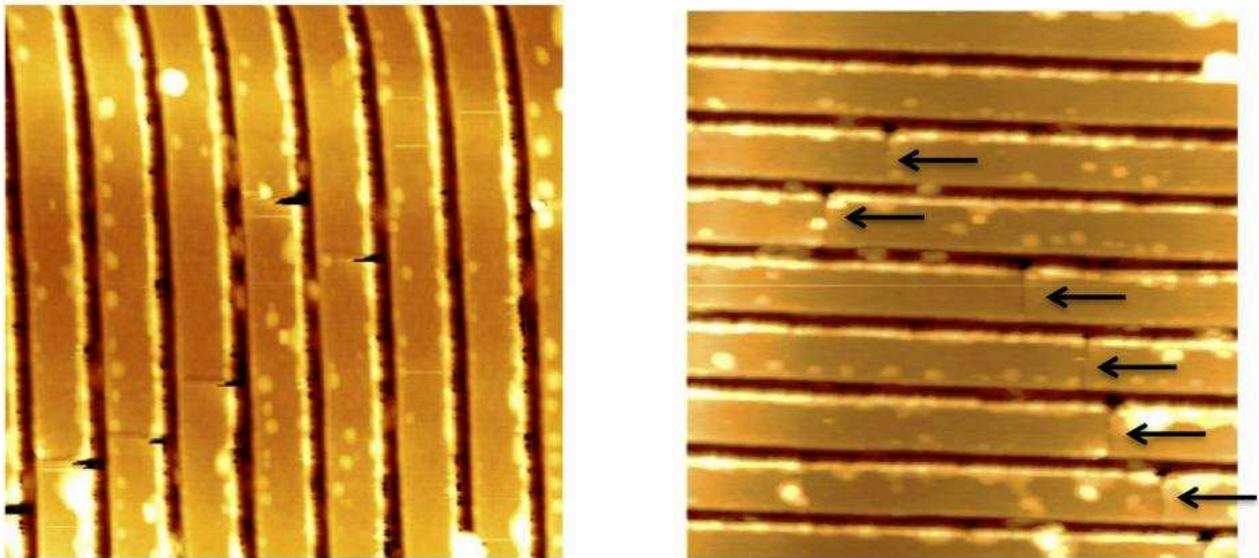


Figure 3.7 : Images AFM obtenues à partir d'une même région d'un échantillon composé des nanolignes de $Ni_{80}Fe_{20}$ sur Kapton[®] soumis à une déformation de 7%. L'image de droite a été obtenue avec un balayage le long de la traction alors que l'image de gauche a été obtenue avec un balayage perpendiculaire à la traction. Les fissures, bien que présente dans les deux images, ne semblent observables que sur la figure de droite.

1.2.3 Mesure *in situ* de la résistivité

Nous avons par ailleurs réalisé des mesures de résistance électrique (*in situ*) en fonction de la déformation imposée sur certains échantillons. La résistivité ρ ($\Omega.m$) d'un matériau de longueur L et de section S représente la capacité qu'à celui-ci à s'opposer à la circulation d'un courant électrique. Celle-ci s'exprime simplement avec la résistance électrique R : $R = \rho L/S$. Dans le cas de films minces métalliques, cette valeur est généralement mesurée à l'aide de la méthode dite des 4 pointes. Cette méthode permet une mesure quantitative de la résistivité des films minces métalliques en s'affranchissant de la résistance des fils permettant d'injecter le courant électrique au sein du système. Durant cette thèse, nous avons utilisé un dispositif plus sommaire (résistivité 2 pointes) car ce qui nous intéresse n'est pas de mesurer les valeurs intrinsèques de la résistivité du film mais son évolution relative. Ainsi, lorsque les premières fissures apparaissent, on note une augmentation significative de la résistance (un à deux ordres de grandeurs) du système qui s'explique simplement par le fait que l'on casse le chemin du courant électrique. Ces mesures ont été effectuées à l'aide d'un sourcemètre Keithley (Modèle 2400) permettant de contrôler le courant injecté et de mesurer directement la résistance du système. Les deux fils conducteurs sont collés à la surface du film mince à l'aide d'une pâte conductrice, recouvert de part et d'autre par du scotch Kapton[®] afin de s'affranchir de la résistance de la machine de traction. Une photographie du dispositif est présentée sur la figure 3.8.

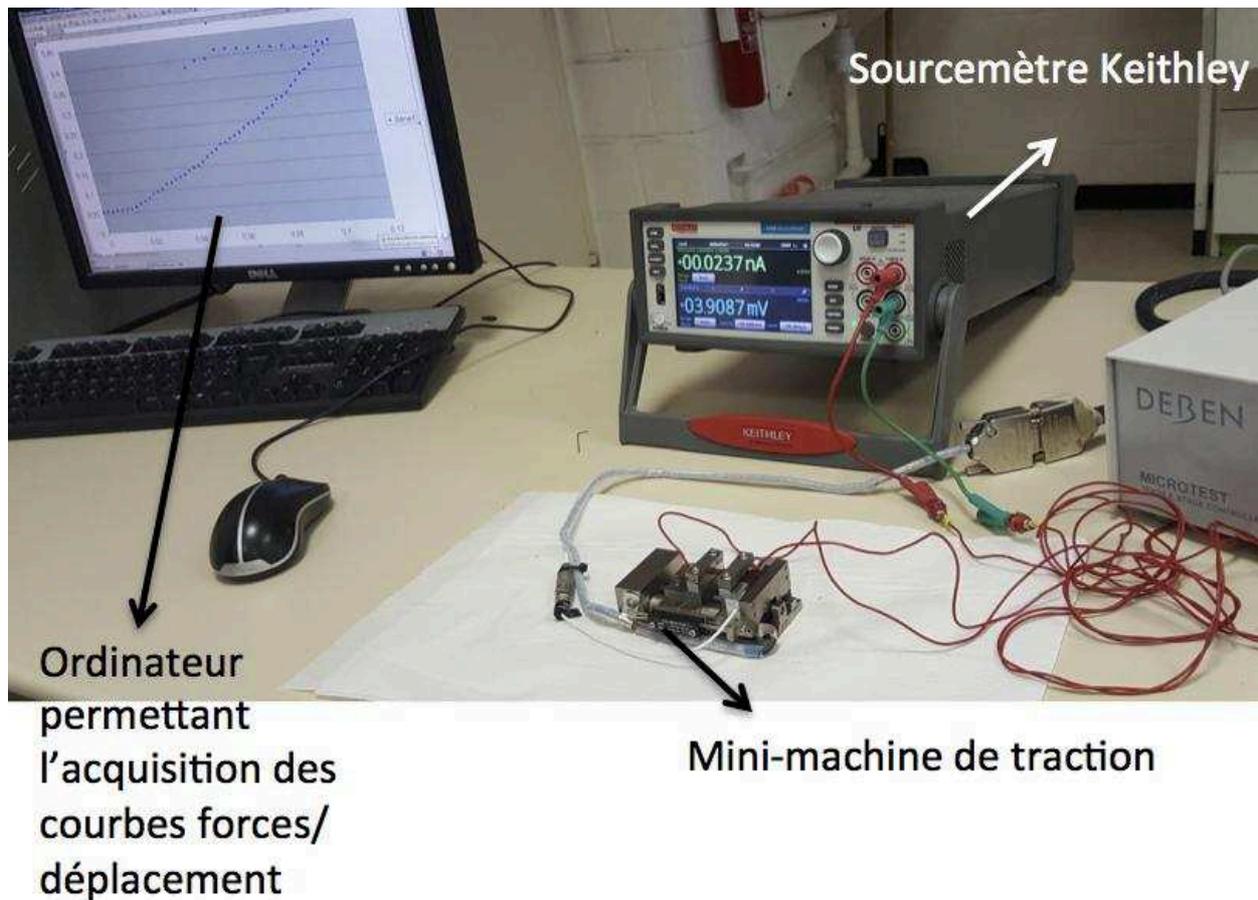


Figure 3.8 : Photographie du dispositif permettant la mesure de la résistance relative des échantillons durant des essais de traction.

Il est à noter que ce type de montage n'est pas nouveau mais il est formidablement efficace pour connaître les distances entre les fissures, leur largeur et la tension pour laquelle elles apparaissent et se multiplient [15-19]. Un exemple typique de courbe obtenue à partir d'un film mince de CoFeB (20 nm) déposé sur Kapton[®] est présenté sur la figure 3.9. Les mesures ont été réalisées avec une intensité de courant électrique de 0,1 mA. Nous avons tracé la variation de résistance normalisée (R_0 est la résistance en absence de déformation et R est la résistance mesurée pour chaque déformation). La courbe de gauche est identique à celle de droite, nous avons simplement utilisé une échelle logarithmique afin de mettre en évidence la variation brutale de la résistance lorsque les premières fissures apparaissent (entre 1 et 2 % de déformation). Compte tenu de la rapidité d'exécution de cette mesure par rapport à l'imagerie par AFM, cette méthode permet une détermination plus précise de la déformation à laquelle apparaissent les fissures.

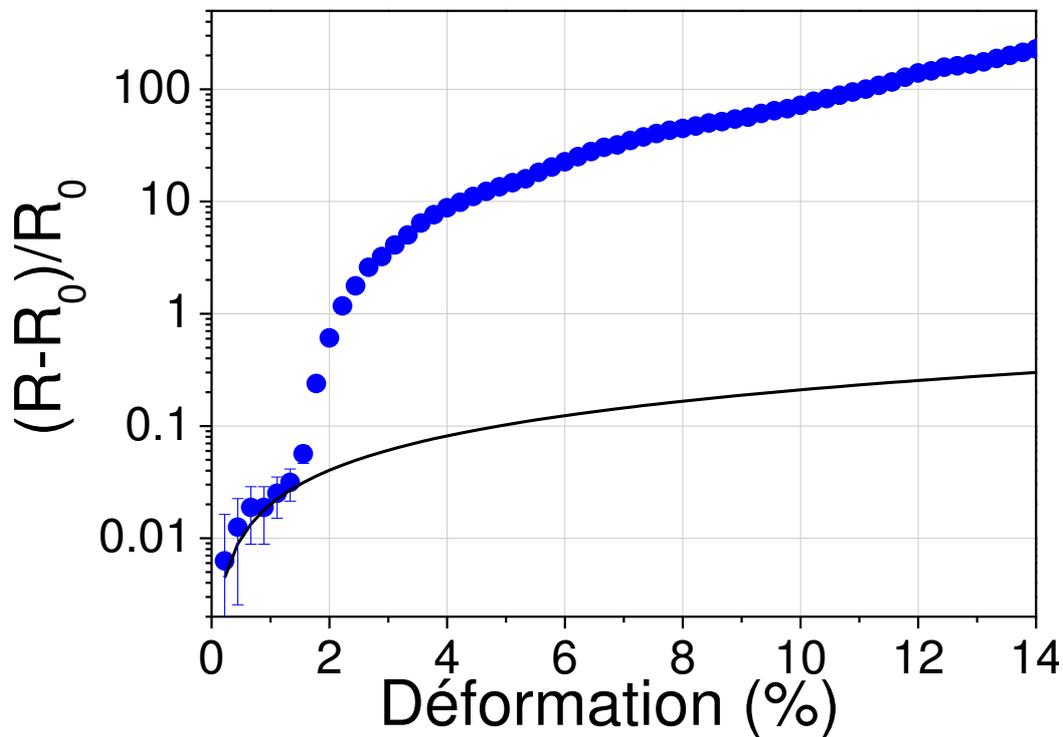
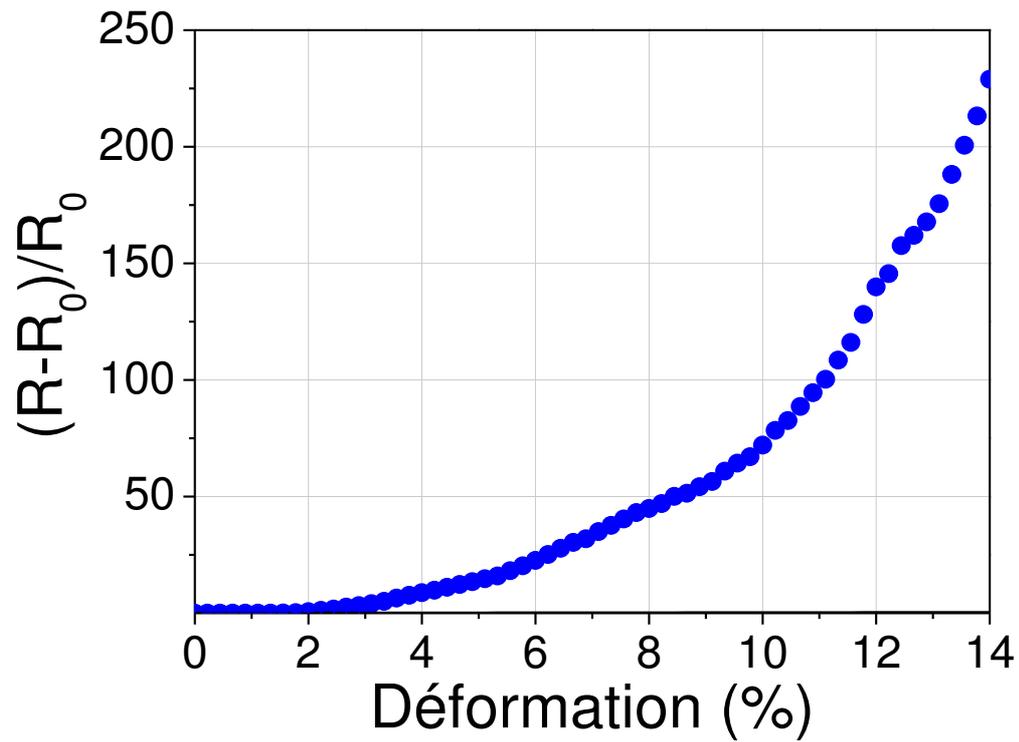


Figure 3.9: Evolution de la résistance relative en fonction de la déformation ϵ d'un film mince de CoFeB ($h_f = 20$ nm) déposé sur Kapton®. Nous avons tracé cette variation en échelle logarithmique sur la figure de droite afin de mettre en évidence l'augmentation brutale de la résistance. La courbe en trait plein continu que l'on ne distingue qu'en utilisant une échelle logarithmique correspond à la courbe théorique de la variation de résistance due à l'écartement des 2 points de mesures (écartement des mors).

2. La résonance ferromagnétique

L'influence de l'application de grandes déformations a été principalement sondé en utilisant un banc de résonance ferromagnétique large bande (10 MHz-20 GHz). Avant de présenter l'aspect instrumental de cette technique, il est nécessaire de brièvement survoler les principes de base de la théorie du micromagnétisme à l'aide de laquelle une analyse quantitative des propriétés statiques et dynamiques est possible à partir de mesures de résonance ferromagnétique.

2.1 Théorie du micromagnétisme

La théorie du micromagnétisme est un modèle de type milieu continu qui a été mis au point dans les années 1940-1950 [20,21]. Elle permet de modéliser le comportement des milieux ferromagnétiques. Ce modèle associe une énergie interne aux champs magnétiques issus de phénomènes physiques différents. Ces champs peuvent être le champ magnétique appliqué au milieu (ou Zeeman), le champ d'échange qui favorise l'alignement de deux spins voisins, le champ d'anisotropie magnétocristalline qui favorise certaines directions d'aimantation ou encore le champ magnétoélastique. Ainsi, chaque champ apparaît (\vec{H}_i) comme la dérivée fonctionnelle d'une densité d'énergie (E_i):

$$\vec{H}_i = -\frac{\partial E_i}{\partial \vec{M}}$$

où \vec{M} est l'aimantation du milieu. On considère ainsi que le milieu magnétique est constitué d'une distribution continue de petits aimants permanents, que l'on appellera moments magnétiques par la suite. Seule la direction de ces moments peut varier dans l'espace et dans le temps. En effet, dans cette théorie, on suppose que la norme de l'aimantation est fixe. Dans ces conditions, il est possible de calculer les états d'équilibre du milieu magnétique par la minimisation de l'énergie libre (somme des énergies internes). Ainsi, l'organisation en domaines et parois magnétiques que l'on retrouve dans certains milieux ferromagnétiques découle directement d'une compétition entre ces différentes énergies. Enfin, pour étudier l'évolution temporelle du milieu ferromagnétique, on associe à cette théorie une équation aux dérivées partielles (spatio-temporelle): l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert [22,23]. Nous commençons cette section par présenter les différentes énergies auxquelles nous avons été confrontés durant cette thèse avant de présenter l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert.

2.1.1 Les différents termes d'énergies

L'énergie Zeeman représente l'interaction de l'aimantation (somme des moments magnétiques par unité de volume, unité: emu.cm^{-3}) avec le champ magnétique extérieur (\vec{H}) et s'écrit: $E_{zee} = -\vec{H} \cdot \vec{M}$. Cette énergie est minimale lorsque l'aimantation est alignée (même direction et même sens) le long du champ appliqué.

L'énergie d'échange, d'origine quantique, est responsable de l'alignement local des moments magnétiques et donc de l'apparition d'une phase ordonnée à la température de Curie (ferromagnétisme). Cette énergie a tendance à rendre l'aimantation localement uniforme. Cette énergie peut s'écrire: $E_{ech} = \frac{A}{M_s^2} \left(\left(\frac{\partial \vec{M}}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial \vec{M}}{\partial y} \right)^2 + \left(\frac{\partial \vec{M}}{\partial z} \right)^2 \right)$, où M_s est l'aimantation à

saturation du milieu et A est la constante d'échange (elle vaut typiquement 10^{-6} erg.cm⁻¹ dans les milieux ferromagnétiques).

L'énergie magnétostatique (ou de champ démagnétisant ou encore dipolaire) est la partie de l'excitation magnétique créée par \vec{M} dans le cadre des équations de Maxwell. Cette contribution est globale et rayonne à l'extérieur de milieu ferromagnétique. Ainsi, contrairement aux autres contributions provenant de l'aimantation, cette contribution n'est pas nulle à l'extérieur du milieu. Cette énergie s'exprime à l'aide du champ démagnétisant (\vec{H}_{dem}): $\delta E_{dem} = -\frac{1}{2} \int \vec{H}_{dem} \cdot \delta \vec{M}$ avec $\vec{H}_{dem} = -\iiint \text{div} \vec{M} \frac{\overline{OP}}{OP^3} dV + \iint \vec{n} \cdot \vec{M} \frac{\overline{OP}}{OP^3} dS$, où V et S correspondent au volume et à la surface du milieu, \vec{n} est le vecteur normal, O est le point où se trouve l'élément de volume magnétique et P est un point variable. Ce champ \vec{H}_{dem} satisfait aux équations de Maxwell de la magnétostatique. De manière générale, ce champ démagnétisant n'est uniforme ni en direction ni en amplitude dans le volume du milieu. Il dépend fortement de la forme du milieu. Ainsi, ce champ démagnétisant ne se calcule de façon aisée qu'uniquement dans le cas d'objets de formes ellipsoïdales uniformément aimanté ($\text{div} \vec{M} = 0$) [24,25]. Dans ce dernier cas le champ démagnétisant s'écrit: $\vec{H}_{dem} = -4\pi \vec{N} \vec{M}$, où \vec{N} est le tenseur de démagnétisation. Lorsque les axes principaux de l'ellipsoïde coïncident avec ceux du repère, le tenseur de démagnétisation est diagonal avec $N_{xx} + N_{yy} + N_{zz} = 1$. La densité d'énergie associée au champ démagnétisant peut alors prendre la forme : $E_{dem} = 2\pi(N_{xx}M_x^2 + N_{yy}M_y^2 + N_{zz}M_z^2)$.

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline est due à la structure cristalline du matériau. En effet, expérimentalement, on observe qu'il est plus difficile d'aimanter un échantillon monocristallin dans certaines directions cristallographiques que dans d'autres. Cette anisotropie traduit l'existence de termes d'énergies dépendant de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallins. L'origine physique de cette anisotropie est attribuée au couplage spin-orbite. Les orbites atomiques, perturbées par l'entourage ionique, sont liées au réseau. Par l'intermédiaire du couplage spin-orbite, les spins se trouvent également liés au réseau. Il est d'usage de développer l'anisotropie magnétocristalline en fonction de l'orientation de l'aimantation [26]. A titre d'exemple, la forme du terme d'énergie magnétocristalline dans le cas de cristaux hexagonaux s'écrit:

$E_{MC} = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^6 \theta + K_3 \sin^6 \theta \sin 6\varphi$, où θ et φ sont les angles sphériques usuels, l'axe polaire étant choisi parallèlement à l'axe c du cristal. Les constantes K_i sont des constantes qui s'expriment en erg.cm⁻³.

L'énergie magnétoélastique est due au couplage entre l'aimantation et les déformations du réseau cristallin [27,28]. L'origine microscopique est également le couplage spin-orbite. Cette anisotropie magnétoélastique se retrouve par exemple dans les films minces épitaxiés. En effet, afin de s'adapter au substrat, la maille du réseau se déforme générant ainsi un champ magnétoélastique au sein du film. Cette énergie s'écrit comme le produit doublement contracté du tenseur des contraintes et du tenseur des déformations magnétique:

$$E_{ME} = -\sigma : \varepsilon_{mag}$$

Il faut noter que le tenseur des déformations ε_{mag} est celui issu de la magnétostriction dite directe et dépend de la direction de l'aimantation. Dans le cas de milieu isotrope (ce qui est le cas de l'ensemble des systèmes étudiés durant cette thèse), l'expression de cette déformation est assez simple:

$$\varepsilon_{mag} = \begin{pmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & -\lambda/2 & 0 \\ 0 & 0 & -\lambda/2 \end{pmatrix}$$

λ étant le coefficient de magnétostriction qui peut être positif ou négatif. Ce coefficient vaut quelques 10^{-6} dans les métaux de transition [27,28]. Il est sans unité car il s'agit de la déformation du matériau magnétique lorsque celui-ci est soumis à un champ magnétique. Ainsi, dans le cas de milieu isotrope, il n'y a qu'un seul coefficient de magnétostriction. Enfin, il est intéressant de noter qu'il existe des méthodes d'homogénéisation (Voigt et Reuss par exemple) permettant de déterminer des coefficients de magnétostriction effectifs dans des milieux hétérogènes à partir des coefficients de magnétostriction des matériaux massifs. En réalité, le cas isotrope n'est qu'un cas particulier de ces méthodes d'homogénéisation.

Les différents termes d'énergies que l'on vient d'introduire permettent de déterminer les configurations statiques d'équilibre des moments magnétiques en minimisant l'énergie libre du système. Cela ne se fait de façon analytique que dans quelques cas particuliers. Une des approches permettant de déterminer une configuration d'équilibre est de rechercher un minimum local pour l'énergie libre avec la contrainte $\vec{M}^2 = M^2$ (norme fixe de l'aimantation). On utilise pour cela un multiplicateur de Lagrange λ : $L = E_{lib} + \lambda(\vec{M}^2 - M^2)$. La configuration d'équilibre s'obtient alors en dérivant cette formule par \vec{M} : $2\lambda\vec{M} = -\frac{\partial E_{lib}}{\partial \vec{M}}$.

2.1.2 Dynamique de l'aimantation

Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert

Nous présentons ici l'équation permettant de rendre compte de l'évolution temporelle de l'aimantation (équation de Landau-Lifshitz-Gilbert: LLG) [22,23]. En effet, à l'aide de la résonance ferromagnétique, il est possible de sonder des modes magnétostatiques qui évoluent dans le temps et dont la fréquence dépend des différents termes d'énergie que l'on vient de présenter et *in fine* des différentes constantes servant à définir ces énergies (constante d'échange, de magnétostriction, ...) [29,30]. Une expression analytique de ces fréquences peut être déterminée à l'aide de l'équation LLG. Ainsi, l'équation de LLG s'écrit:

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M} \wedge \frac{\partial \vec{M}}{\partial t}$$

Le champ effectif (\vec{H}_{eff}) correspond à la somme des différents champs introduit précédemment et γ est le rapport gyromagnétique. Le premier terme du membre de droite est un terme de précession de l'aimantation autour de ce champ effectif constant. Il correspond au couple exercé par le champ effectif sur l'aimantation. L'annulation de ce couple détermine la configuration d'équilibre. Le second terme correspond à la dissipation d'énergie et est caractérisé par le coefficient adimensionnel de Gilbert (α). Sans ce second terme, l'aimantation ne peut atteindre un état d'équilibre thermodynamique stable (\vec{M} aligné le long de \vec{H}_{eff}).

Lorsque $\alpha = 0$, cette équation indique que l'aimantation précesse uniformément autour de ce champ à une fréquence propre dite de Larmor $\omega_{Lar} = \gamma \vec{H}_{eff}$. L'ordre de grandeur du coefficient α est 0,01 dans la plupart des matériaux ferromagnétiques [29].

Nous allons maintenant déterminer l'expression analytique de la fréquence du mode uniforme. Il s'agit du mode que nous avons principalement étudié en résonance ferromagnétique et qui correspond à une précession en phase de l'ensemble des moments magnétiques présent dans le matériau. Le calcul est basé sur la méthode de Smith et Beljers [31,32]. Il s'agit d'exprimer l'équation de LLG en coordonnées sphériques et à linéariser cette dernière en considérant de petites oscillations $\delta\theta$ et $\delta\varphi$ du vecteur aimantation autour de sa position d'équilibre définie par l'angle polaire θ_0 et l'angle azimutal ϕ_0 . En développant l'énergie libre du système au second ordre en $\delta\theta$ et $\delta\varphi$, l'équation de la LLG est transformée en un système 2x2 dont la solution donne accès à l'aimantation dynamique $\delta\vec{m}$ puis au tenseur de susceptibilité dynamique.

Ainsi, en coordonnées sphériques, l'aimantation s'écrit $\vec{M} = M(\sin\theta\cos\varphi\vec{e}_x + \sin\theta\sin\varphi\vec{e}_y + \cos\theta\vec{e}_z)$. On considère de petites déviations de ces angles autour d'une position d'équilibre: $\theta = \theta_0 + \theta_1(t)$ et $\varphi = \varphi_0 + \varphi_1(t)$ avec $\theta_0 \gg \theta_1(t)$ et $\varphi_0 \gg \varphi_1(t)$. Dans ces conditions, l'équation de LLG s'écrit (on omet volontairement la partie dissipative de l'équation car la fréquence de précession n'en dépend pas):

$$\begin{aligned} \frac{\partial\varphi_1}{\partial t} \frac{1}{\gamma} M \sin\theta_0 + \theta_1 \frac{\partial^2 E}{\partial\theta^2} + \varphi_1 \frac{\partial^2 E}{\partial\theta\partial\varphi} &= 0 \\ -\frac{\partial\theta_1}{\partial t} \frac{1}{\gamma} M \sin\theta_0 + \varphi_1 \frac{\partial^2 E}{\partial\theta^2} + \theta_1 \frac{\partial^2 E}{\partial\theta\partial\varphi} &= 0 \end{aligned}$$

On suppose qu'à la résonance, l'aimantation effectue de petites oscillations périodiques de pulsation ω . Ainsi, $\theta_1(t) = \theta_1 e^{i\omega t}$ et $\varphi_1(t) = \varphi_1 e^{i\omega t}$. La fréquence propre du système correspond alors à la fréquence du mode uniforme, soit:

$$\omega_{res} = \left(\frac{\gamma}{\sin\theta_0} \right)^2 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial\theta^2} \frac{\partial^2 E}{\partial\varphi^2} - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial\theta\partial\varphi} \right)^2 \right)_{\theta_0, \varphi_0}$$

Cette équation, connue sous l'appellation d'équation de Smith-Beljers, permet de déterminer l'orientation de l'aimantation et la fréquence de résonance du mode uniforme en connaissant la forme de l'énergie libre du système.

Mode uniforme au sein d'un film mince ferromagnétique typique

Dans ce paragraphe, nous allons calculer la fréquence du mode uniforme (celui accessible par résonance ferromagnétique) d'un film mince ferromagnétique soumis à un champ magnétique dans son plan. Pour cela, on considère un film mince d'épaisseur h_f le long de z . On suppose par ailleurs la présence d'une anisotropie magnétique uniaxiale planaire d'ordre deux (nous verrons que la plupart de nos films présentent une telle anisotropie). La figure 3.10 présente un schéma du film mince avec le système de coordonnées et les angles introduits pour le calcul de la fréquence du mode uniforme. Dans ces conditions, la densité d'énergie magnétique du système s'écrit :

$$E = E_{Zee} + E_{dip} + E_u$$

Où $E_{Zee} = -\vec{H} \cdot \vec{M}$, $E_{dip} = 2\pi(\vec{M} \cdot \vec{e}_z)^2$ et $E_u = K_u(\vec{M} \cdot \vec{u})^2/M^2$ sont les énergies Zeeman, dipolaire et d'anisotropie d'ordre deux, respectivement. En utilisant la formulation de Simth et Beljers, la fréquence se calcule aisément⁴ :

$$f = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H \cos(\varphi - \varphi_H) + H_u \cos 2\varphi) \left((H \cos(\varphi - \varphi_H) + H_u \cos^2 \varphi + 4\pi M_s) \right)}$$

Où φ_H est l'angle entre le champ magnétique et la direction d'anisotropie du film mince. La figure 3.10 présente les résultats du calcul de la fréquence du mode uniforme pour un champ magnétique appliqué dans la direction x (axe facile) et y (axe difficile). Nous avons utilisé les paramètres magnétiques suivant : $M_s = 800 \text{ emu.cm}^{-3}$, $\gamma = 1.844 \times 10^7 \text{ s}^{-1} \cdot \text{Oe}^{-1}$ et $H_u = 200 \text{ Oe}$. On note un amollissement de la fréquence lorsque le champ est appliqué le long de y. Cet amollissement a lieu pour un champ qui compense exactement le champ d'anisotropie uniaxiale ($H_u = 2K_u/M_s$), il est caractéristique d'une direction difficile pour l'aimantation (hard axis). Des mesures menées dans ces conditions permettent presque directement de mesurer les champs d'anisotropie planaire. Par ailleurs, les mesures que nous avons réalisées consistent à fixer la fréquence et à balayer le champ magnétique, on extrait ainsi un champ de résonance H_{res} . Pour ce faire, il suffit de remplacer H par H_{res} dans l'équation ci-dessus. Si l'on trace la variation (voire figure 3.10) de ce champ de résonance pour une fréquence donnée, on peut mesurer de façon assez directe l'amplitude du champ d'anisotropie H_u . En effet, en première approximation, on trouve que $2H_u = H_{res}(0^\circ) - H_{res}(180^\circ)$. Enfin, on note que la dépendance angulaire de ce champ de résonance reflète l'ordre de l'anisotropie (deux ici).

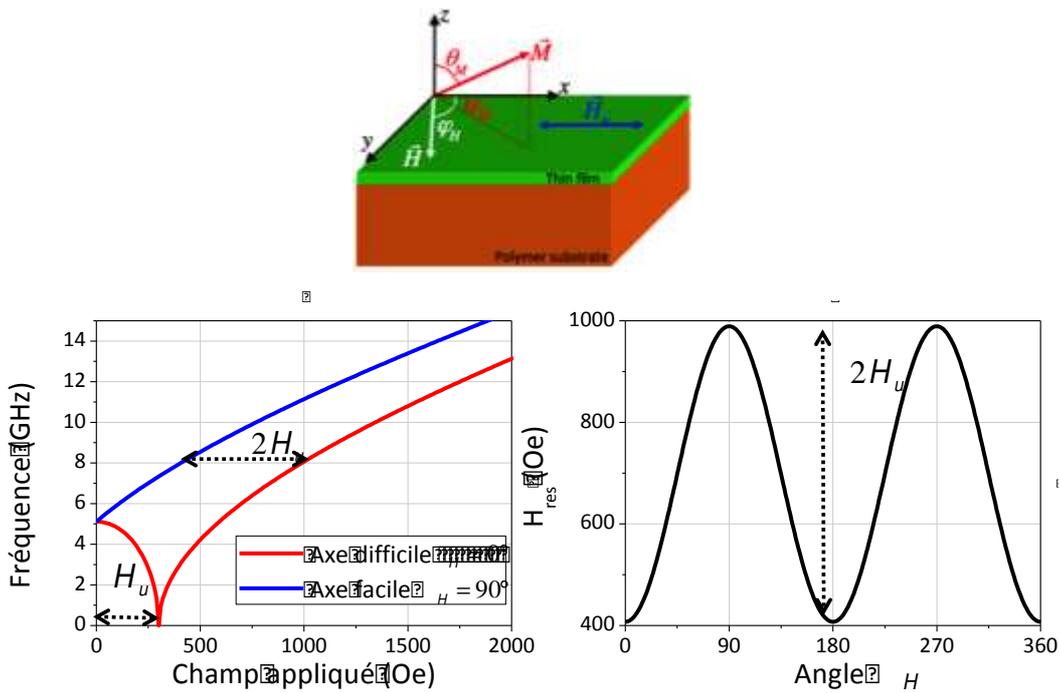


Figure 3.10: *Haut* : Schéma présentant le système de coordonnées et les angles introduits pour le calcul de la fréquence du mode uniforme. *Bas-gauche* : fréquence du mode uniforme en fonction du champ magnétique, la courbe bleue (resp. rouge) correspond à un champ magnétique appliqué le long de la direction facile (resp. difficile). *Bas-droite* : Dépendance angulaire du champ de résonance du mode uniforme pour une fréquence de 8 GHz.

⁴ Il s'agit de la fréquence en considérant que l'aimantation est contenue dans le plan du film mince, c'est à dire en considérant que $\theta = \frac{\pi}{2}$.

2.2 Aspect instrumental de la résonance ferromagnétique

2.2.1 Principe de base

La résonance ferromagnétique (RFM) est l'absorption résonante d'un champ électromagnétique extérieur par un matériau ferromagnétique. Dans une approche quantique, si l'on considère le cas d'un cristal paramagnétique, l'application d'un champ magnétique statique \vec{H} lève la dégénérescence des niveaux d'énergie des électrons (spins $\pm 1/2$): c'est l'effet Zeeman. La différence d'énergie entre deux niveaux adjacents est $\Delta E = \mu_0(g\mu_B H)$. La superposition d'un champ hyperfréquence \vec{h}_{rf} dans une direction transverse à \vec{H} peut induire des transitions électroniques entre niveaux d'énergie adjacents. L'énergie radiofréquence absorbée par le cristal est maximale pour $\hbar\omega = \Delta E$; c'est le phénomène de résonance. Nous avons vu précédemment, dans une vision cette fois-ci classique, que l'aimantation précesse autour du champ effectif (\vec{H}_{eff}). Ici, à la résonance, l'angle de précession augmente considérablement, ce qui se traduit par une forte absorption de la puissance incidente du signal hyperfréquence. Contrairement aux cas des matériaux paramagnétiques, les spins d'un matériau ferromagnétique sont fortement couplés par les forces d'interaction d'échange. La résonance observée correspond alors à un mode collectif macroscopique de précession en phase des spins autour de leur orientation d'équilibre statique dans le champ magnétique \vec{H} . La résonance ferromagnétique pour les matériaux usuels est typiquement dans le domaine micro-ondes (1-100 GHz). Elle permet une étude des propriétés fines du matériau. Cette technique donne accès aux modes magnétiques invariants dans le plan de la couche.

Expérimentalement il existe différents types de spectromètres de RFM qui diffèrent par leur façon d'exciter l'échantillon: les spectromètres standards et les spectromètres large bande. Les spectromètres de résonance "classiques" sont constitués d'une cavité résonante micro-onde à l'intérieur de laquelle est placé l'échantillon, l'ensemble résidant dans l'entrefer d'un électro-aimant. Ainsi les échantillons sont excités à une fréquence fixe [typiquement à 9,23 GHz (bande X), à 14GHz (bande Ku) ou à 22,3 GHz (bande K)] [29]. On alimente alors la cavité par l'intermédiaire d'un guide d'onde à cette fréquence de travail et l'on mesure la puissance absorbée en fonction du champ magnétique statique appliqué. La résonance est atteinte lorsque la fréquence de précession des moments magnétiques coïncide avec la fréquence de résonance de la cavité et se traduit par un maximum de puissance absorbée par le film magnétique. Ce type de spectromètre présente l'avantage d'avoir un facteur de qualité, qui est défini comme la largeur relative de la résonance, élevé. Ainsi la résonance est fine et la sélection de sa fréquence se fait avec une grande qualité. L'inconvénient majeur de ce type de spectromètre réside dans l'utilisation d'une fréquence d'excitation fixe qui limite ainsi une étude " large bande ". Un second type de spectromètre présentant des facteurs de qualité moins élevés mais permettant d'étudier la dynamique de l'aimantation dans une large gamme de fréquences (10MHz - 40GHz) a été utilisé durant cette thèse, on parle dans ce cas de résonance ferromagnétique large-bande [33,34].

2.2.2 Le montage expérimental

Le schéma de notre banc de mesure est présenté sur la figure 3.11. On y voit les principaux appareillages utilisés: un électroaimant, un générateur radiofréquence, un amplificateur à détection synchrone et une ligne micro-ruban. Dans notre banc, l'échantillon à étudier est placé sur une ligne micro-ruban (impédance de 50 Ohm) parcouru par un courant hyperfréquence. Ce courant provient d'un générateur de micro-ondes (10 MHz-20GHz, Agilent 83752B) et est envoyé sur la ligne micro-ruban par le biais d'un câble coaxial. Après avoir traversée la ligne micro-ruban, où une partie de l'énergie micro-onde est absorbée par l'échantillon, le courant est renvoyé vers un amplificateur à détection synchrone *via* une diode Schottky qui va convertir le courant radiofréquence en tension électrique. En réalisant cette dernière opération, on augmente le rapport signal sur bruit. Etant limité en fréquence, on ne peut amplifier directement les signaux hyperfréquences nécessaires à l'excitation. On a recours alors à une technique de modulation du champ magnétique. En plus du champ statique, on applique un champ auxiliaire de faible amplitude (5 Oe) et oscillant à basse fréquence (140 Hz). Ce champ auxiliaire module le champ statique. Le champ magnétique perçu par l'échantillon oscille alors autour du champ statique. Le signal détecté en présence du champ auxiliaire, est périodique et reflète l'excursion de la puissance absorbée autour de sa position moyenne par l'échantillon en l'absence de modulation. La puissance absorbée par le matériau comporte un terme à la fréquence de modulation qui est proportionnel à la dérivée de la puissance par rapport au champ. Les deux prochains paragraphes sont consacrés à la présentation de la cellule d'excitation et de la technique de modulation du champ magnétique.

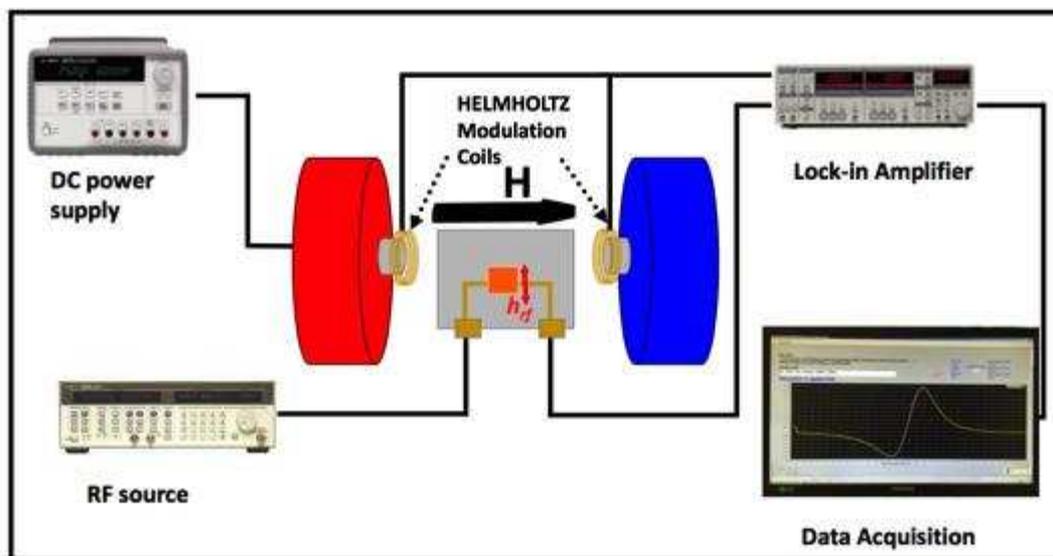


Figure 3.11 : Schéma de notre dispositif expérimental mettant en évidence la cellule d'excitation utilisée, le détecteur à amplification synchrone, l'électroaimant, les bobines de modulation, le générateur radiofréquence et l'alimentation de courant statique.

2.2.3 Focus sur la cellule d'excitation et la technique de modulation

La cellule d'excitation

L'excitation magnétique des échantillons est réalisée à l'aide d'une ligne micro-ruban [35] comme le montre la figure 3.12. Cette « cavité résonnante ouverte » est constituée d'une ligne de conduction en cuivre de longueur l et de largeur w , séparée d'un plan de masse par un séparateur diélectrique (l'alumine Al_2O_3) d'épaisseur h , de permittivité ϵ et de perméabilité μ . Cette ligne a été imaginée afin d'accorder l'impédance à 50Ω (car le signal à transmettre est radiofréquence [35,36]). Le choix des différents paramètres peut facilement être modélisé par l'utilisation de numériquement ou analytiquement en utilisant les équations du télégraphistes. On peut montrer assez aisément que l'impédance est fonction de la permittivité, de la perméabilité et de l'épaisseur du diélectrique [35]:

$$Z_0 = \frac{h}{\omega} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}}$$

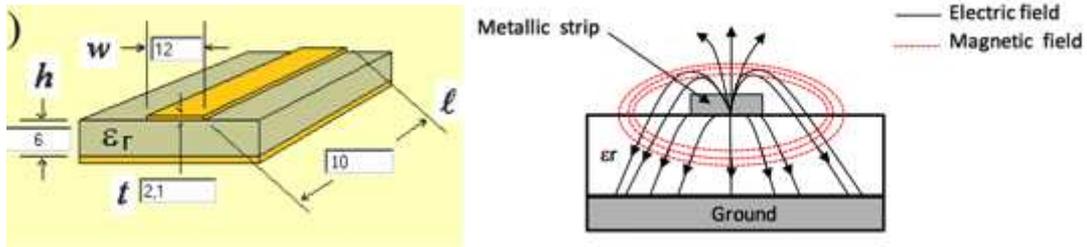


Figure 3.12 : *Gauche :* Design de la ligne micro-ruban utilisée durant nos expériences (les longueurs sont données en mm). *Droite:* Représentation schématique des champs électrique et magnétique rayonné par la ligne micro-ruban, seule la partie champ électrique nous intéresse ici. On voit que le champ magnétique radiofréquence entoure la ligne de transmission.

Technique de modulation

Nous présentons ici la technique de modulation que nous avons systématiquement utilisé durant les expériences de résonance ferromagnétique menées durant cette thèse [37]. Le but de ce focus sur cette méthode est de comprendre pourquoi les signaux issus de nos expériences correspondent à des dérivées de Lorentzienne. Lorsque le rapport signal sur bruit ne permet pas une mesure directe de l'absorption par le matériau, un amplificateur à détection synchrone est utilisé. Pour cela, on applique en plus du champ statique \vec{H}_0 , une légère modulation basse fréquence qui a la forme $\vec{h}_0 \cos \Omega t$. Où Ω est la fréquence de modulation et où $\vec{h}_0 \ll \vec{H}_0$ est l'amplitude de cette modulation. Ainsi, la puissance transmise après absorption par l'échantillon est fonction d'un champ variable dans le temps $P_a(H(t)) = P_a(H_0 + h_0 \cos \Omega t)$. Le développement en série de Taylor autour de \vec{h}_0 s'écrit :

$$P_a(H(t)) = P_a(H_0) + h_0 \cos(\Omega t) \frac{dP_a}{dH} \Big|_{H=H_0} + \frac{1}{2} (h_0 \cos \Omega t)^2 \frac{d^2 P_a}{dH^2} \Big|_{H=H_0} + \dots$$

L'amplificateur à détection synchrone se charge ensuite de multiplier $P_a(H(t))$ par le signal de référence $V_{ref} = \cos \Omega t + \phi$, on obtient ainsi :

$$V_{ref} P_a(\omega(t)) = \frac{h_0}{2} \cos(\phi) \frac{dP_a}{dH} \Big|_{H=H_0} + P_a(H_0) \cos(\Omega t + \phi) + \frac{h_0}{2} \cos(2\Omega t + \phi) \frac{dP_a}{dH} \Big|_{H=H_0} + \dots$$

Il suffit alors d'appliquer à ce signal un filtre passe-bas de fréquence de coupure choisie de façon à ne conserver que le premier terme de la relation ci-dessus. On a alors une mesure proportionnelle à la dérivée par rapport au champ de la puissance absorbée. La figure 3.12 présente l'obtention du spectre $\frac{dP_a}{dH} = f(H)$ à partir d'un spectre d'absorption $P_a = f(H)$. Ainsi, tous les spectres de résonance ferromagnétique présentés dans ce manuscrit correspondent à la dérivée d'une fonction Lorentzienne.

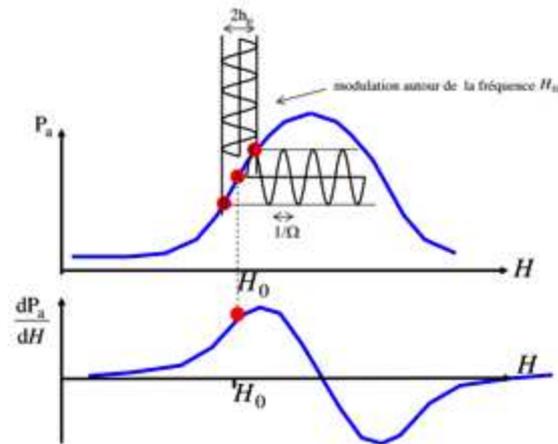


Figure 3.13 : Technique de modulation de la fréquence. Considérons la valeur H_0 (point A) : le signal détecté est périodique et reflète l'excursion de P_a autour du point moyen A entre les points B et C.

Bibliographie

- [1] D. Faurie, P.-O. Renault, E. Le Bourhis, Ph. Goudeau, "Determination of elastic constants of a fiber-textured gold film by combining synchrotron x-ray diffraction and in situ tensile testing", *Journal of Applied Physics* 98, 093511 (2005).
- [2] D. Faurie, P.-O. Renault, E. Le Bourhis, Ph. Goudeau, "Study of texture effect on elastic properties of Au thin films by X-ray diffraction and in situ tensile testing", *Acta Materialia* 54, 4503 (2006).
- [3] Liviu Solomon, « Elasticité linéaire », éd. Masson, cop. (1968).
- [4] T. Jiang, R. Huang, Y. Zhu, "Interfacial Sliding and Buckling of Monolayer Graphene on a Stretchable Substrate", *Advanced Functional Materials* 24, 396 (2014).
- [5] Y. Letterier, L. Boogh, J. Andersons, J.-A. E. Manson, "Adhesion of silicon oxide layers on poly(ethylene terephthalate). I: Effect of substrate properties on coating's fragmentation process", *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics* 35 (9), 1449 (1997).
- [6] Y. Xiang, T. Li, Z. Suo, J. J. Vlassak, "High ductility of a metal film adherent on a polymer substrate", *Applied Physics Letters* 87, 161910 (2005).
- [7] R. M. Niu, G. Liu, C. Wang, G. Zhang, X. D. Ding, J. Sun, "Thickness dependent critical strain in submicron Cu films adherent to polymer substrate", *Applied Physics Letters* 90, 161907 (2007).
- [8] N. Lu, X. Wang, Z. Suo, J. Vlassak, "Metal films on polymer substrates stretched beyond 50%", *Applied Physics Letters* 91, 221909 (2007).
- [9] F. Toth, F. G. Rammerstorfer, M. J. Cordill, F. D. Fischer, "Detailed modelling of delamination buckling of thin films under global tension", *Acta Materialia* 61, 2425 (2013).
- [10] M.J. Cordill, F. D. Fischer, F. G. Rammerstorfer, G. Dehm, "Adhesion energies of Cr thin films on polyimide determined from buckling: Experiment and model", *Acta Materialia* 58 5520 (2010).
- [11] M.J. Cordill, V.M. Marx, "In-situ Tensile Straining of Metal Films on Polymer Substrates under an AFM", *Proc. 1527 Materials Research Society* (2013).
- [12] <http://deben.co.uk>
- [13] G. Binnig, C. F. Quate, and Ch. Gerber, "Atomic Force Microscope", *Physical Review Letters* 56, 930 (1986).
- [14] A. S. Argon and M. I. Bessonov, "Plastic deformation in polyimides, with new implications on the theory of plastic deformation of glassy polymers", *Philosophical Magazine* 35, 917 (1976).
- [15] S.P. Lacour, J. Jones, S. Wagner, T. Li, Z. Suo, "Stretchable Interconnects for Elastic Electronic Surfaces" *Proceedings of the IEEE* 93, No. 8 (2005).
- [16] N.Lambricht, T. Pardoën, S. Yunus, "Giant stretchability of thin gold films on rough elastomeric substrates", *Acta Materialia* 61, 540 (2013).
- [17] A. Chortos and Z. Bao, "Skin-inspired electronic devices", *Materials Today* 17, 321 (2014).
- [18] M. J. Cordill, O. Glushko, J. Kreith, V.M. Marx, C. Kirchlechner, "Measuring electro-mechanical properties of thin films on polymer substrates" *Microelectronic Engineering* 137, 96 (2015).
- [19] T. Yang, W. Wang, H. Zhang, X. Li, J. Shi, Y. He, Q.-S. Zheng, Z. Li, H. Zhu, "Tactile Sensing System Based on Arrays of Graphene Woven Microfabrics: Electromechanical Behavior and Electronic Skin Application", *ACS Nano* 9, 10867 (2015).
- [20] W.F. Brown Jr, "Theory of the Approach to Magnetic Saturation", *Physical Review* 58:736–743, (1940).
- [21] W. F. Brown Jr, *Micromagnetics*, Wiley-Interscience, New York (1963).
- [22] T. L. Gilbert, "A Lagrangian Formulation of the Gyromagnetic Equation of the Magnetization Field", *Physical Review* 100, 1234 (1955).
- [23] L. Landau and E. Lifshitz. "On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies", *Phys. Z. Sowjetunion* (1935).
- [24] J. A. Osborn, "Demagnetizing Factors of the General Ellipsoid", *Physical Review* 67, 351 (1945).
- [25] A. Aharoni, "Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms", *Journal of Applied Physics* 83, 3432 (1998).
- [26] M. Getzla, "Fundamental of magnetism", Springer (2008).

- [27] S. Chikazumi, "Physics of Ferromagnetism", Oxford University Press, New York (1997).
- [28] E. Du Trémollet De Lacheisserie, Magnetostriction. Theory and Application of Magnetoelasticity (Boca Raton, FL: CRC Press) (1993).
- [29] M. Farle, "Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers", Reports on Progress in Physics 61, 755 (1998).
- [30] C. Kittel, "On the Theory of Ferromagnetic Resonance Absorption", Physical Review 73, 155 (1948).
- [31] J. Smith and H.G. Beljers, "Ferromagnetic resonance absorption in BaFe₁₂O₁₉, a highly anisotropic crystal", Philips Research Reports 10, 113 (1955).
- [32] H. Suhl, "Ferromagnetic Resonance in Nickel Ferrite Between One and Two Kilomegacycles", Physical Review 97, 555 (1955).
- [33] I. S. Maksymov and M. Kostylev, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures 69, 253 (2014).
- [34] I. S. Maksymov and M. Kostylev, "Microwave eddy-current shielding effect in metallic films and periodic nanostructures of sub-skin-depth thicknesses and its impact on stripline ferromagnetic resonance spectroscopy" Journal of Applied Physics 116, 173905 (2014).
- [35] M. D. Pozar, Microwave Engineering, 4th Edition., Wiley.
- [36] E. Salahun, G. Tanné, P. Quéffélec, M. Lefloc'h, A.-L. Adenot, O. Acher, "Application of ferromagnetic composite in different planar tunable microwave devices", Microwave and Optical Technology Letters 30, 272 (2001).
- [37] C.-K. Lo, Instrumentation for Ferromagnetic Resonance Spectrometer, in Ferro- magnetic Resonance - Theory and Applications, O. Yaln, Ed. InTech, (2013).

Chapitre 4

Multifissuration et décollements subséquents de films minces

Sommaire

1. Observation de la fissuration par imagerie AFM
 2. Analyse quantitative : densités et profondeurs des fissures
 3. Mesures de résistance électrique *in situ* – Etude de la fermeture des fissures
 4. Décollement des films minces
 5. Suivi individuel des cloques
 6. Essais de traction *ex situ*
 7. Etude annexe : vieillissement des fissures
-

Dans ce chapitre, nous nous sommes concentrés à identifier expérimentalement les mécanismes de fissuration pour différents alliages magnétiques (CoFeB, $\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_x$) déposés sous forme de films minces sur substrat Kapton® (125 μm). Au chapitre 3, nous avons présenté une étude de Leterrier *et al.* [1] qui a montré l'existence de zones localisées dans lesquelles surviennent la multifissuration mais également le décollement du film mince. Outre le phénomène de multifissuration, la problématique du décollement (« buckling » en anglais) est importante car elle doit également avoir un effet important sur les propriétés magnétiques, comme nous le verrons au cours du chapitre 5. Ce phénomène a beaucoup été étudié [2-8] et des modèles ont été développés afin d'évaluer l'énergie d'adhésion « film/substrat » à partir de ces décollements. Dans ce chapitre, nous débutons notre analyse par l'observation de cette multifissuration et des délaminations de films minces de 5 nm et 20 nm réalisée lors d'essais de traction *in situ*. Nous avons par ailleurs étudié ces multifissurations pour d'autres épaisseurs (10 nm, 50 nm et 100 nm) lors d'essais de traction *ex situ*. Enfin, ce chapitre se termine par la présentation de résultats concernant le fermeture post-essais de ces fissures.

1. Observation de la fissuration par imagerie AFM

Dans cette section, nous avons étudié des films minces (5 nm et 20 nm) des trois matériaux utilisés durant cette thèse (CoFeB, $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ et $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$). Le dispositif permettant le suivi *in situ* de la topographie de la surface des films est présenté dans le chapitre 3. Ainsi, la figure 4.1 représente des images de la surface d'un film mince de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ de 20 nm d'épaisseur après chaque déformation enregistrées dans le but de comprendre le mécanisme de fissuration. Nous n'avons pas mis d'échelle car nous étudierons de manière plus fine la profondeur des fissures dans la section suivante. L'idée est ici de mettre en évidence les fissures qui apparaissent au sein des films et la morphologie de ces dernières. Nous avons essayé d'enregistrer nos images sur une même région du film bien que des dérives de quelques micromètres sont inévitables en ce sens que nous ne disposons pas de boucle de rétroaction sur notre microscope. Dans ce premier cas, on observe que les fissures apparaissent à partir d'une déformation de 5% et que celles-ci se multiplient au cours de la déformation. La forme de celles-ci, sinueuse, est due au mode de rupture ductile du matériau. En effet, de nombreuses études ont montré que dans le cas d'un comportement ductile, les fissures présentaient cette forme. On peut citer par exemple les études de Y. Xiang *et al.* [9] et de J. Marthelot [10]. Le premier a montré l'exemple de films de Cu déposé sur un substrat polymère. Le second l'a fait dans le cadre du dépôt d'un empilement (ZnO/Ag/ZnO), montrant que si l'on augmente l'épaisseur de la couche d'argent (comportement ductile) par rapport à ZnO (comportement fragile) ; les films montraient ce type de fissuration (voir figure 4.2) présentant une propagation non perpendiculaire au sens de la contrainte, mais orientés à 50°, angle proche de la direction des contraintes de cisaillement (45°), contrairement au cas d'une rupture fragile. Enfin, il est intéressant de noter que peu de décohésions sont observables dans le cas de ce matériau.

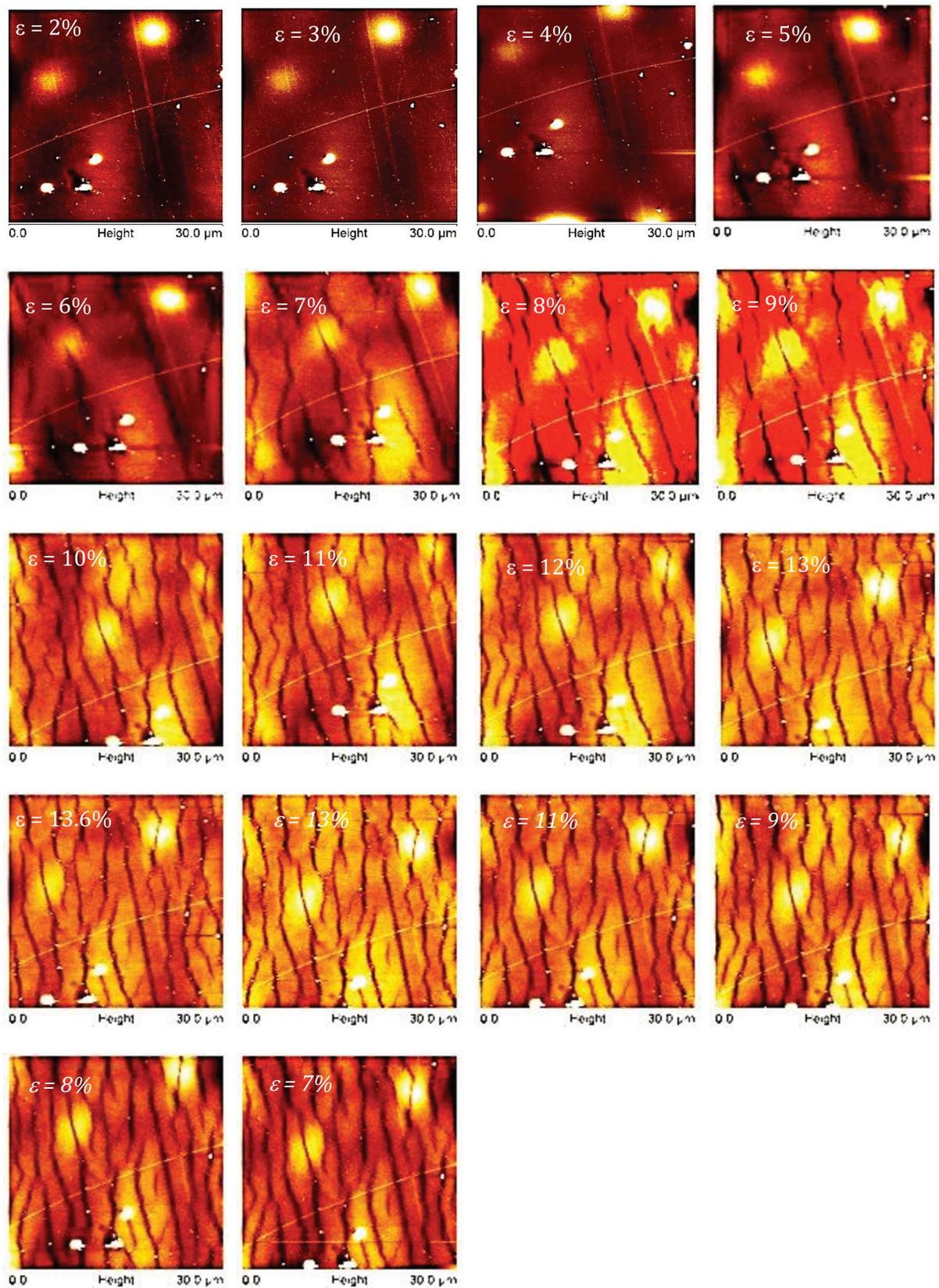


Figure 4.1 : Images AFM mettant en évidence la multifissuration d'un film mince de $Ni_{60}Fe_{40}$ (épaisseur de 20 nm) obtenues après chaque déformation.

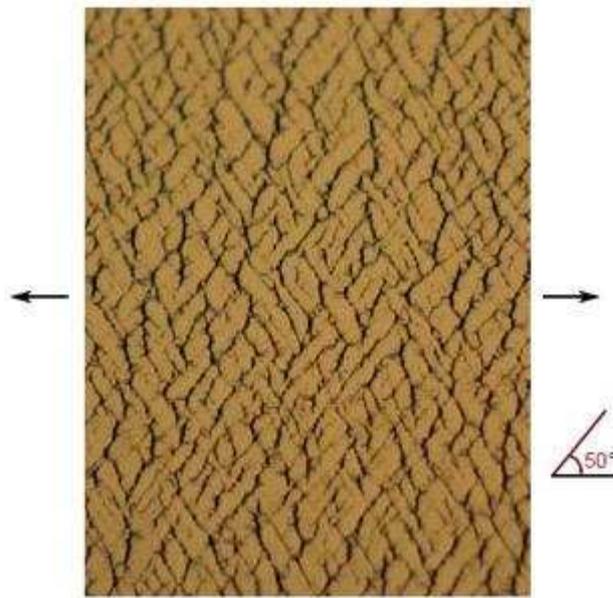


Figure 4.2 : Motifs de fissures d'un multicouche majoritairement ductile d'un système ZnO/Ag/ZnO déposée sur un substrat polymère. L'endommagement est localisé dans des bandes orientées à environ 50° par rapport au sens des contraintes exercées [10].

La figure 4.3 présente des images AFM issues d'un essai de traction *in situ* d'un film mince de CoFeB (20 nm) après chaque déformation. On observe que la morphologie des fissures est totalement différente, elles sont cette fois-ci bien droites. Nous attribuons cela au caractère fragile du CoFeB qui est un verre métallique. Ces fissures apparaissent plus tôt (déformation critique de 2%), se propagent perpendiculairement à la direction de sollicitation et traversent la largeur de l'échantillon. Une étude réalisée par Z. Tang *et al.* [11], concernant l'étude des propriétés magnéto-mécaniques des films CoFeB a montré que les premières fissures apparaissaient à partir de 1% de la déformation mais sans aucune preuve expérimentale. Des comportements similaires ont été retrouvés dans le cas d'études réalisés sur des films aux comportements mécaniques fragiles de Mo [12] ou Ta [13]. Au delà de 2%, nous observons une multifissuration séquentielle. Les fissures se propagent à peu près au milieu de chaque fragment de film formé par les fissures qui se sont propagées précédemment. Enfin, à partir de 8-9%, on observe l'apparition de fissures transverses (qui sont en fait des décohésions du film) avec un arrêt du processus de fissuration et une saturation de la distance entre les fissures (nous analyserons cela de manière plus fine dans la section suivante).

Le cas du Ni₈₀Fe₂₀ est assez intéressant car il présente un comportement intermédiaire aux deux précédents matériaux. En effet, la figure 4.4 présente les images AFM d'un film mince de Ni₈₀Fe₂₀ de 20 nm d'épaisseur enregistrées tous les un pourcent de déformation. On observe dans un premier temps l'apparition de fissures droites (comme dans le cas du CoFeB) perpendiculaire à l'axe de traction jusqu'à environ 3-4% de déformations. Puis des fissures à la morphologie plus sinueuse apparaissent entre ces fissures droites. Cela est sans doute caractéristique d'un comportement intermédiaire aux CoFeB et Ni₆₀Fe₄₀. La propagation de ces fissures sinueuses est sans doute affectée par le champ de contrainte hétérogène induit par les fissures « primaires ». Ici également, on note l'apparition et la multiplication de cloques, signe de la délamination du film. Ce cloquage peut s'expliquer par la compression transverse du film mince, lors de l'essai de traction [10,13] et à l'écoulement plastique du substrat.

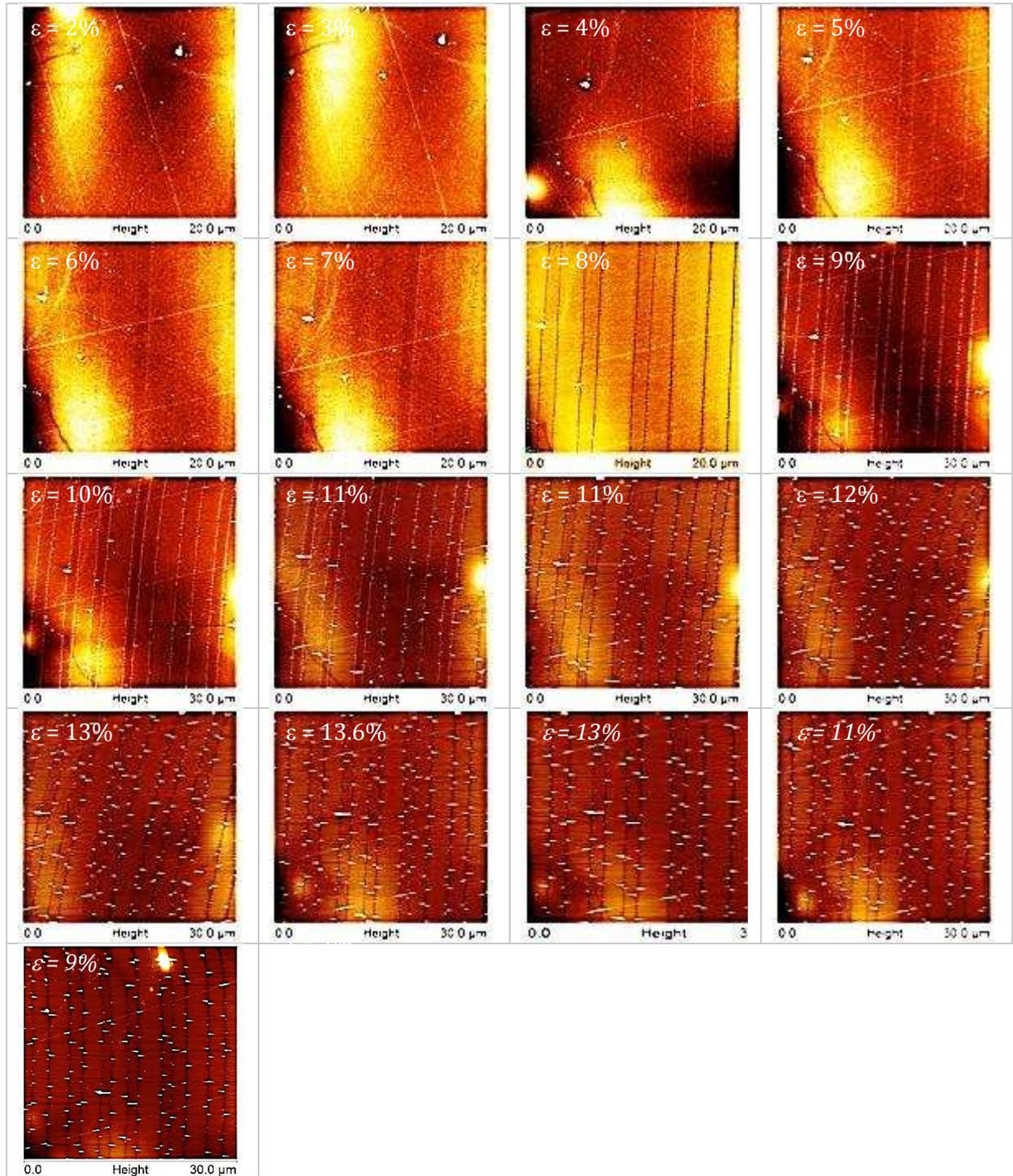


Figure 4.3 Images AFM mettant en évidence la multifissuration d'un film mince de CoFeB (épaisseur de 20 nm) obtenues après chaque déformation.

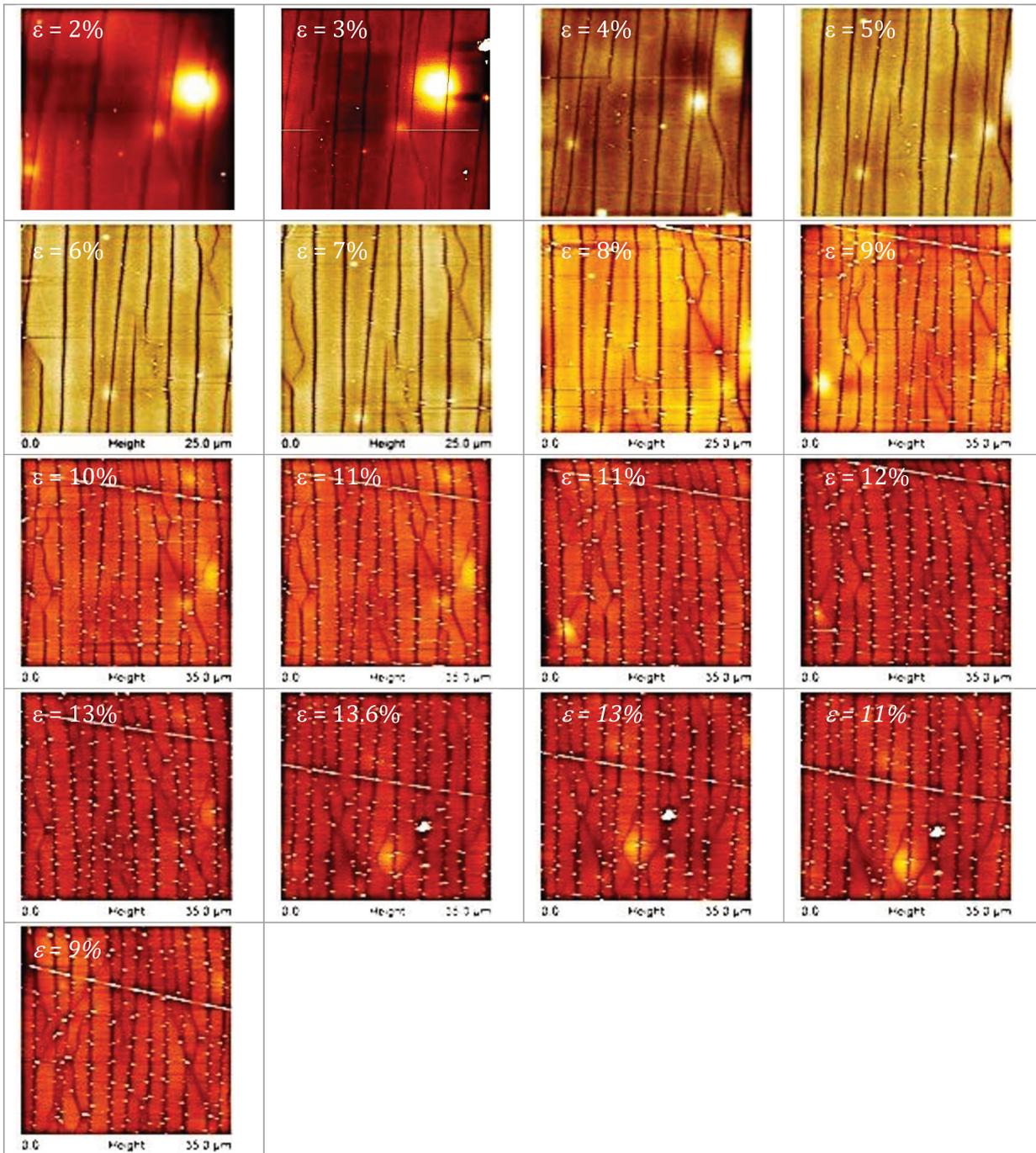


Figure 4.4 : Images AFM du film $Ni_{80}Fe_{20}$ (épaisseur de 20 nm) obtenue après chaque déformation.

Finalement, les figures 4.5, 4.6 et 4.7 représentent les images obtenues dans le cas de films de 5 nm d'épaisseurs pour quelques déformations. Pour cette épaisseur, les fissures sont moins nettes sur les images brutes AFM. Par souci de clarté, nous avons pris soin de représenter quelques images « zoomées » ($4 \times 4 \mu m^2$) réalisées à partir des premières images AFM plus grande initialement. Néanmoins, étant donné que les zooms réalisés ne sont pas effectués sur les mêmes zones, les données quantitatives extraites à partir des images AFM se sont faites pour des images plus grandes. Au vu des images obtenues, on peut observer que tous les matériaux montre un comportement fragile avec des fissures droites, y compris le film mince de $Ni_{60}Fe_{40}$. La fragilité accrue du film mince de $Ni_{60}Fe_{40}$ de 5 nm par rapport au 20 nm est attribuée à un effet de taille : cristallinité plus faible, taille de grains très petites (quelques nanomètres) limitant la ductilité du matériau.

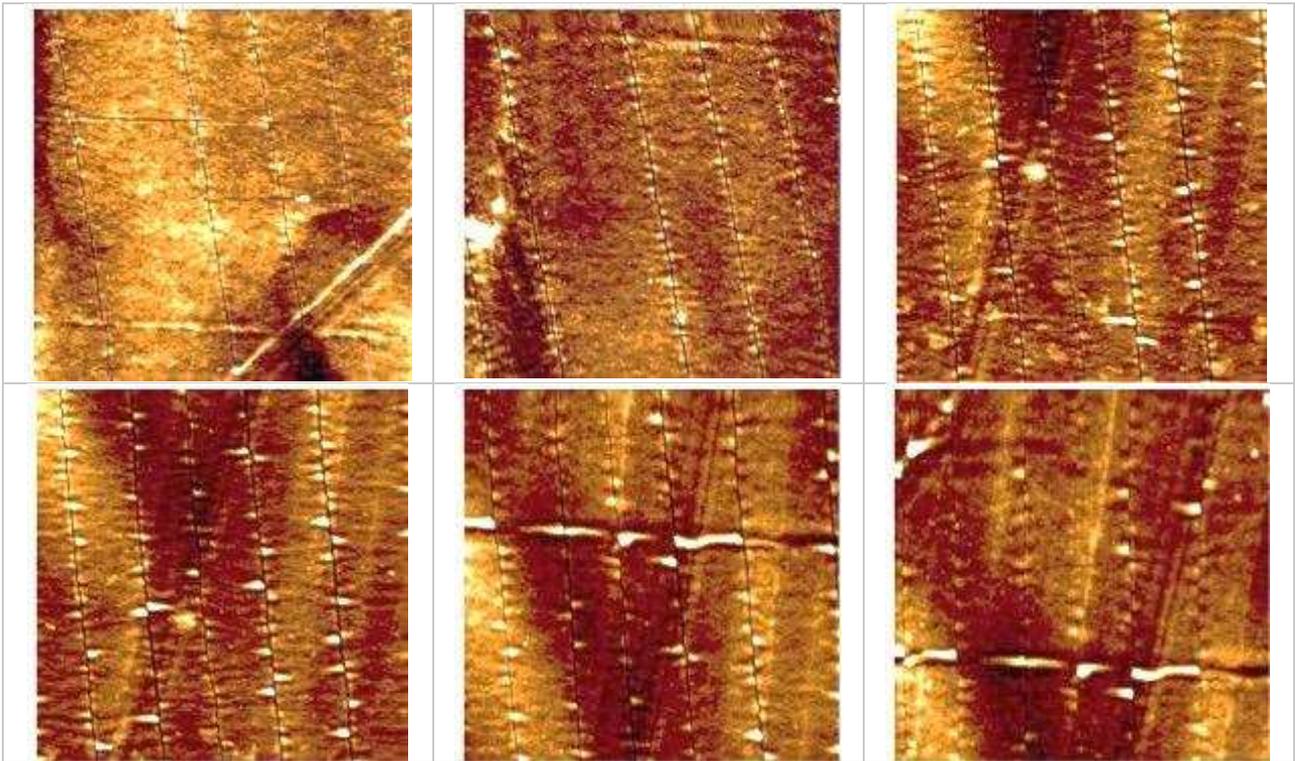


Figure 4.5 : Images AFM du film $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ (épaisseur de 5 nm) obtenue après des déformations de 7, 9, 12, 13.61% aller et à 11 et 8% au retour ($4\mu\text{m} \times 4\mu\text{m}$).

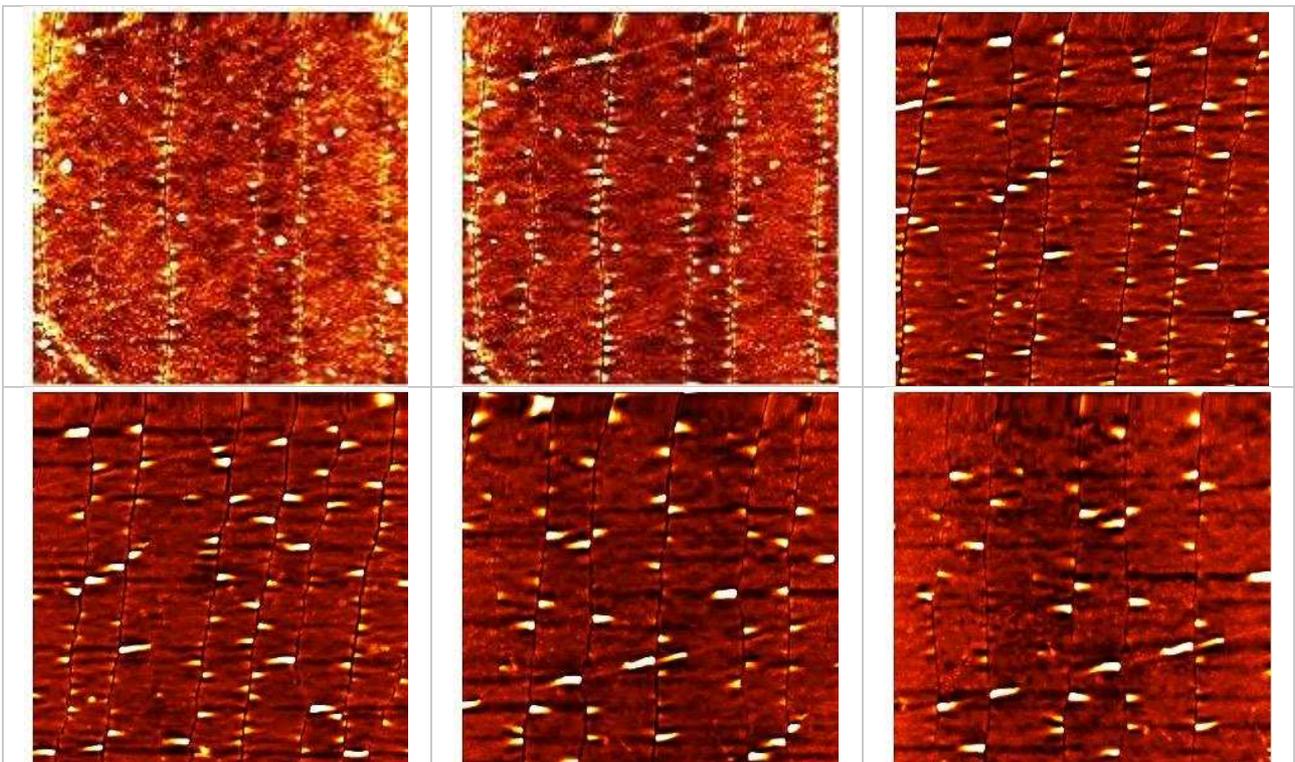


Figure 4.6 : Images AFM du film $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (épaisseur de 5 nm) obtenues après des déformations de 7, 9, 12, 13,61% aller et à 11 et 9% au retour ($4\mu\text{m} \times 4\mu\text{m}$).

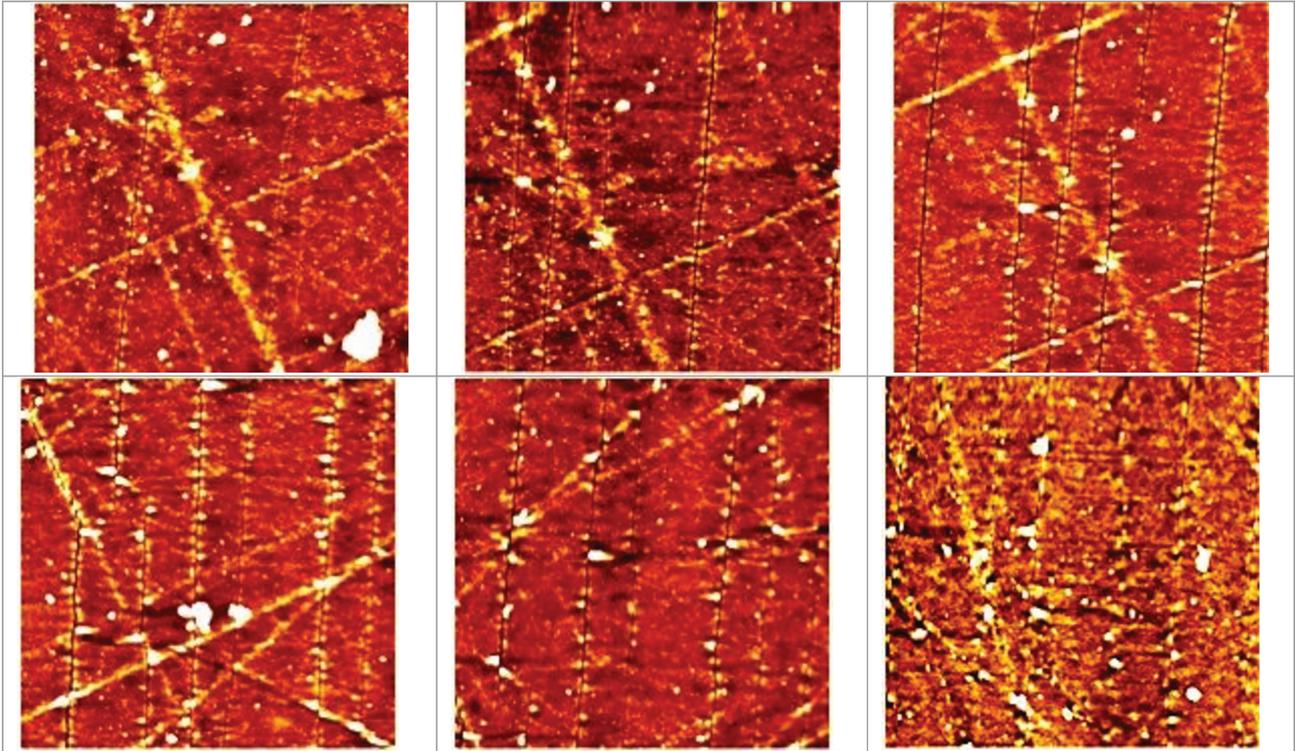


Figure 4.7 : Images AFM du film CoFeB (épaisseur de 5 nm) obtenues après des déformations de 7, 9, 12, 13,61% aller et à 11 et 8% au retour ($4 \times 4 \mu\text{m}^2$).

2. Analyse quantitative : densités et profondeurs des fissures

Dans cette section, nous présentons des analyses quantitatives réalisées à partir des images (mais pas seulement) présentées dans la section 1 de ce chapitre. Nous commençons par présenter notre méthodologie. Afin de déterminer la densité linéique de fissures et la profondeur moyenne de celles-ci, nous avons suivi la méthode représentée sur la figure 4.8. Cette figure présente un profil AFM typique obtenu sur toute la longueur d'une image AFM. Le graphe de gauche présente un profil pris sur plusieurs fissures (sur une distance de 30 μm) alors que le graphe de droite n'en présente qu'une seule (distance de 4,5 μm). Concernant l'évolution de la densité de fissure, l'obtention de cette valeur est le rapport entre le nombre de fissures comptabilisé dans chaque profil (13 dans cet exemple), et la longueur l séparant la première et la dernière fissure. Afin d'obtenir une valeur moyenne significative, cette opération a été répétée pour plusieurs lignes séparées de 1 μm . Ainsi, la densité de fissure représente la moyenne des valeurs obtenues. Concernant, la profondeur de fissuration, nous évaluons la valeur de h (figure 4.8-droite). De même que dans le cas de la détermination de la densité de fissure, nous avons mesuré plusieurs profondeurs en traçant un profil sur chaque fissure et à chaque micron obtenant ainsi une valeur moyenne représentative.

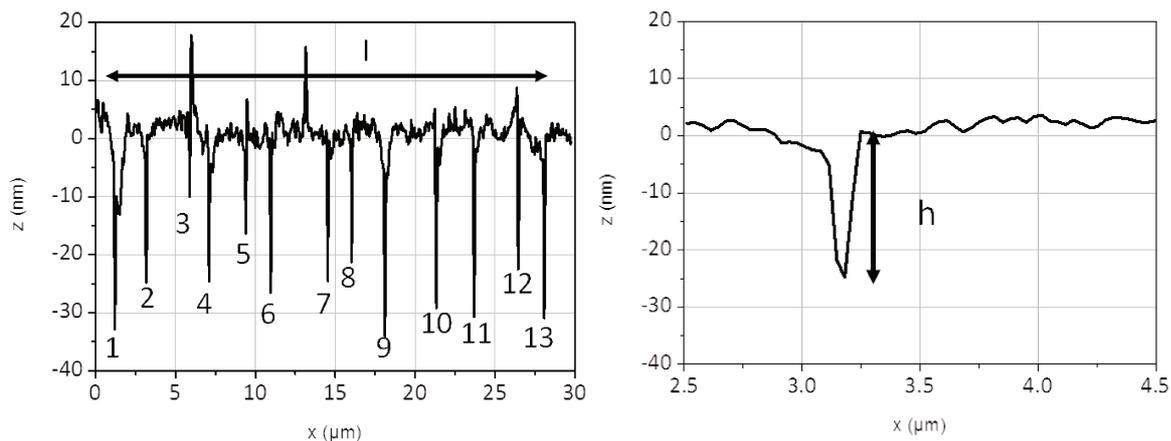


Figure 4.8 : (gauche) Profil 1-D le long d'une image AFM et (droite) profil 1-D d'une fissure.

La figure 4.9 présente l'évolution des profils pour un échantillon de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ de 20 nm d'épaisseur. Cette figure illustre déjà la multiplication des fissures ainsi que l'évolution croissante de leur profondeur. Les figures 4.10-a et 4.10-b présentent l'évolution de la densité et de la profondeur des fissures dans le cas d'un matériau $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ de 20 nm d'épaisseur. A l'apparition des fissures, vers 5%, celles-ci se multiplient et leur profondeur moyenne augmente. La densité de fissure stagne autour de 13%.

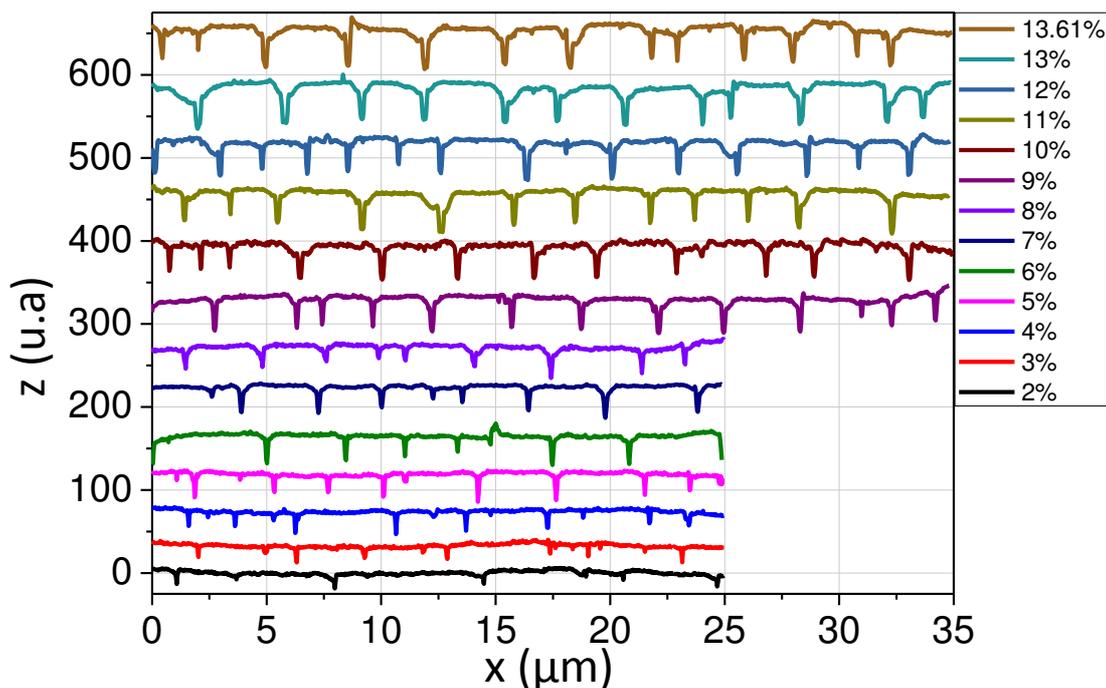


Figure 4.9 : Profil 1D typique le long d'une image AFM pour plusieurs états de déformation. L'unité pour la profondeur z est en nm mais avec une valeur absolue arbitraire pour afficher clairement chaque profil.

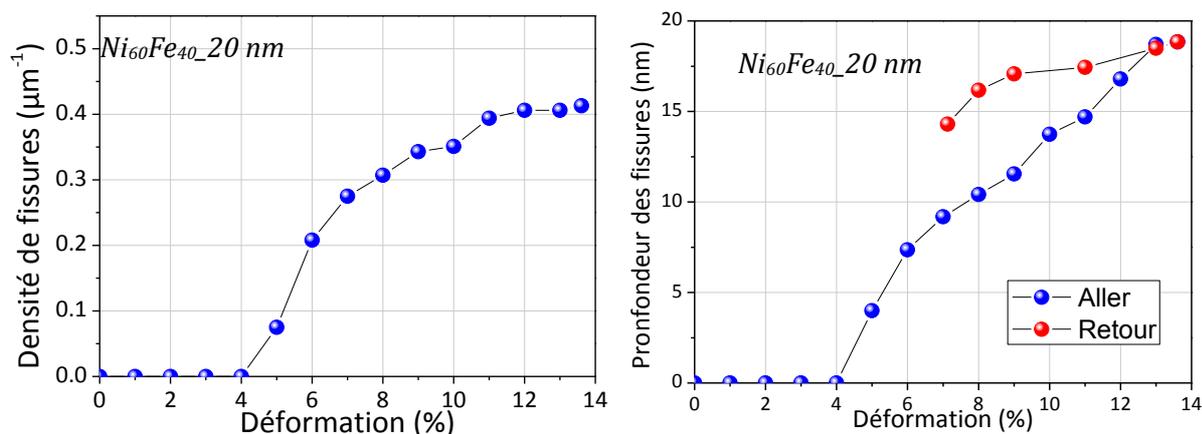


Figure 4.10 : Densité linéique (a) et profondeur (b) des fissures du $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ d'épaisseur de 20 nm.

De même dans le cas des figures 4.11 et 4.12, on observe un même comportement similaire pour les films de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et CoFeB de 20 nm d'épaisseur. Néanmoins, la fissuration augmente plus tôt et sature beaucoup plus vite, à 9 et 6% au lieu des 13% dans le cas du $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$. Nous attribuons cela à la morphologie particulière des fissures des films de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$. Pour les films de pour $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et CoFeB , il est intéressant de noter que la valeur maximale des profondeurs des fissures sont plus élevés que l'épaisseur des films (20 nm) ; elles atteignent même des valeurs de 40 nm dans le cas du $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$. En réalité l'application des contraintes a non seulement provoqué la fissuration des films, mais également la fissuration du substrat comme proposé théoriquement [14] et montré expérimentalement [15].

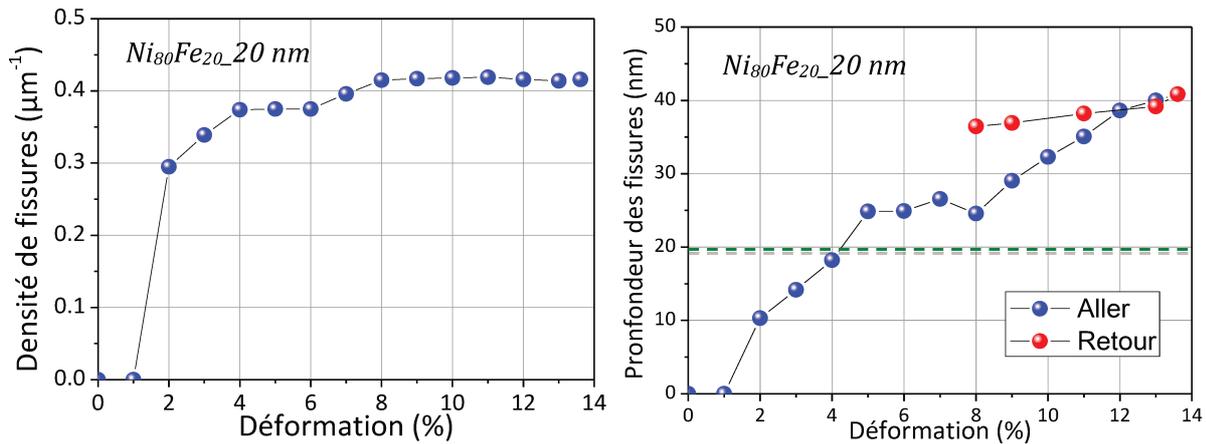


Figure 4.11 : Densité linéique (a) et profondeur (b) des fissures du $Ni_{80}Fe_{20}$ avec une épaisseur de 20 nm.

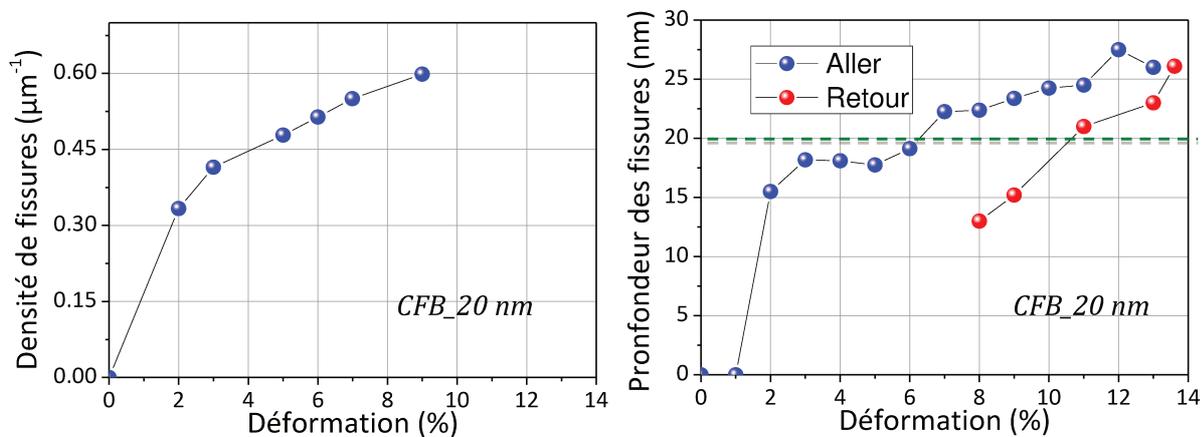


Figure 4.12 : Densité linéique (a) et profondeur (b) des fissures du CFB avec une épaisseur de 20 nm.

Ce même comportement est observable sur les échantillons de 5 nm (figure 4.13). Il est intéressant de noter que la propagation des fissures dans le substrat se produit au delà de 8% de déformation (accroissement de la profondeur des fissures après un plateau sur quelques % de déformation), c'est à dire lorsque le substrat atteint son régime purement plastique entraînant une localisation de la déformation dans les fissures. C'est d'ailleurs pour cette déformation que stoppe la multiplication des fissures. La déformation est alors complètement encaissée par le substrat et le transfert de contrainte substrat/film n'augmente plus lorsque l'on augmente la déformation macroscopique. Ce phénomène est bien entendu visible pour les systèmes les plus fragile ($CoFeB$ et $Ni_{80}Fe_{20}$) caractérisé par des fissures bien parallèles entre elles, et d'autant plus net que l'épaisseur est importante (figure 11).

Pour l'épaisseur la plus faible, la densité de fissures atteint des valeurs bien plus élevés que dans le premier cas, au regard de la figure 4.14, confirmant les analyses faites sur les images AFM, et abordés dans la section 1. La déformation critique s'explique par plusieurs facteurs et les conditions énergétiques de la propagation de la fissure varient avec l'épaisseur de la couche. De même, l'énergie dissipée lors de la propagation des fissures G_c varie dans le cas des films de petites dimensions. Ceci explique le fait que la densité de fissures croît, lorsque l'épaisseur du film diminue. Par exemple, une étude de Cordill *et al.* [16] a montré que dans le cas de film de Cr déposés sur substrat polyimide avec des épaisseurs de films variables, l'espacement entre les fissures, inverse de la densité de fissure, augmentait avec l'épaisseur.

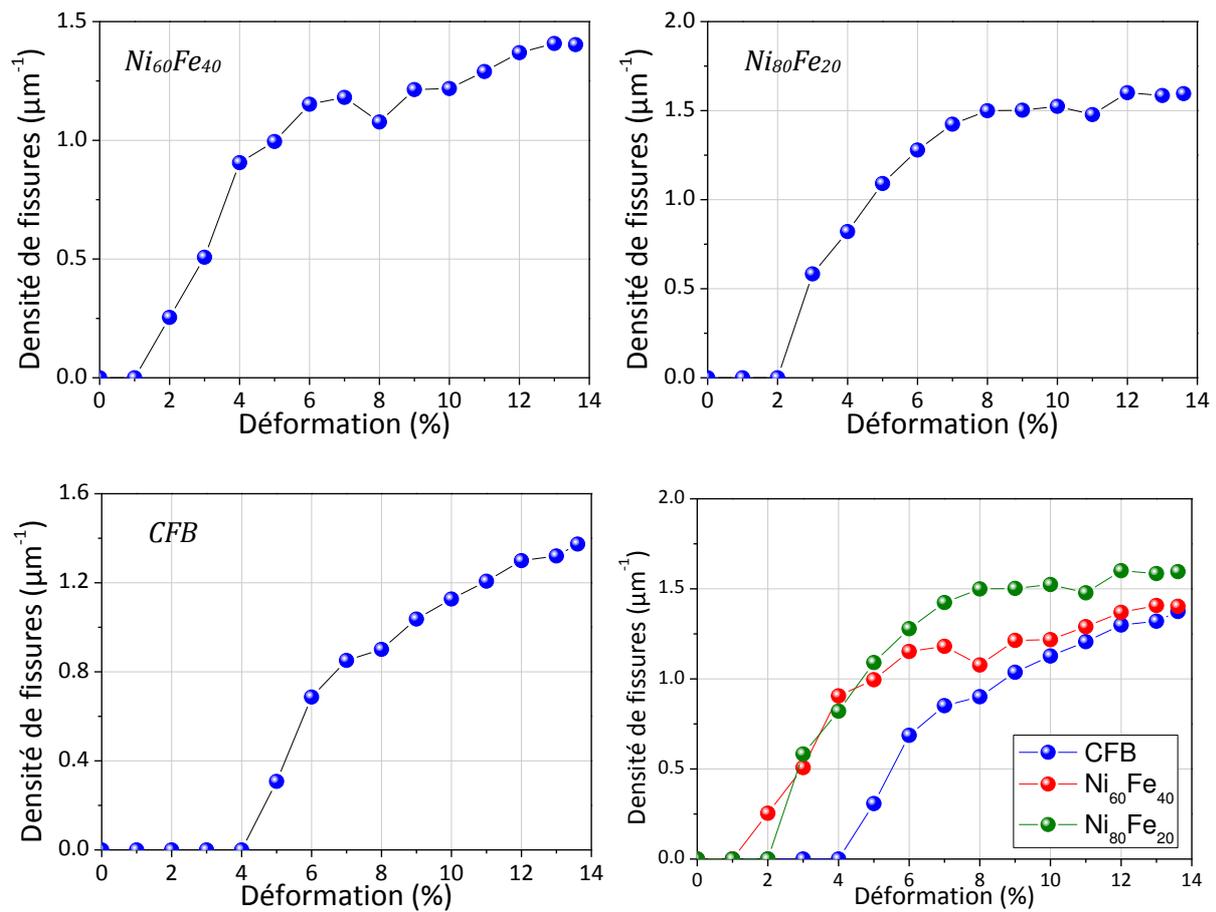


Figure 4.13 : Densités linéiques et profondeurs des fissures des matériaux avec une épaisseur de 5 nm.

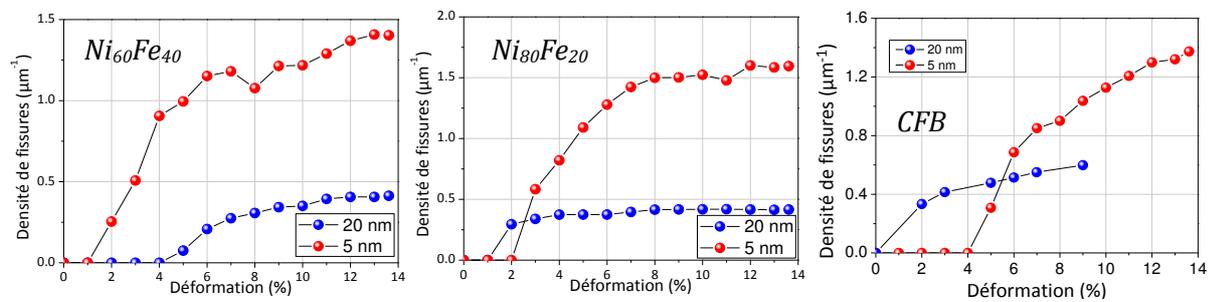


Figure 4.14 : Comparaison des densités linéiques de fissures obtenues pour des matériaux de 5 et 20 nm.

3. Mesures de résistance électrique *in situ* – Etude de la fermeture des fissures

Afin de tester l'initiation des fissures pour les matériaux les plus fragiles, nous avons suivi l'évolution de la résistance électrique relative $\left(\frac{R-R_0}{R_0}\right)$ en fonction de la déformation appliquée ε (pour les films de 20 nm de CoFeB et Ni₈₀Fe₂₀). Les échantillons ont été tirés jusqu'à différentes déformations maximales ε_M pour le CoFeB ($\varepsilon_M = 3.4 ; 9,1$ et 14%), ainsi que le Ni₈₀Fe₂₀ ($\varepsilon_M = 5,5 ; 7 ; 8,8$ et $10,9\%$).

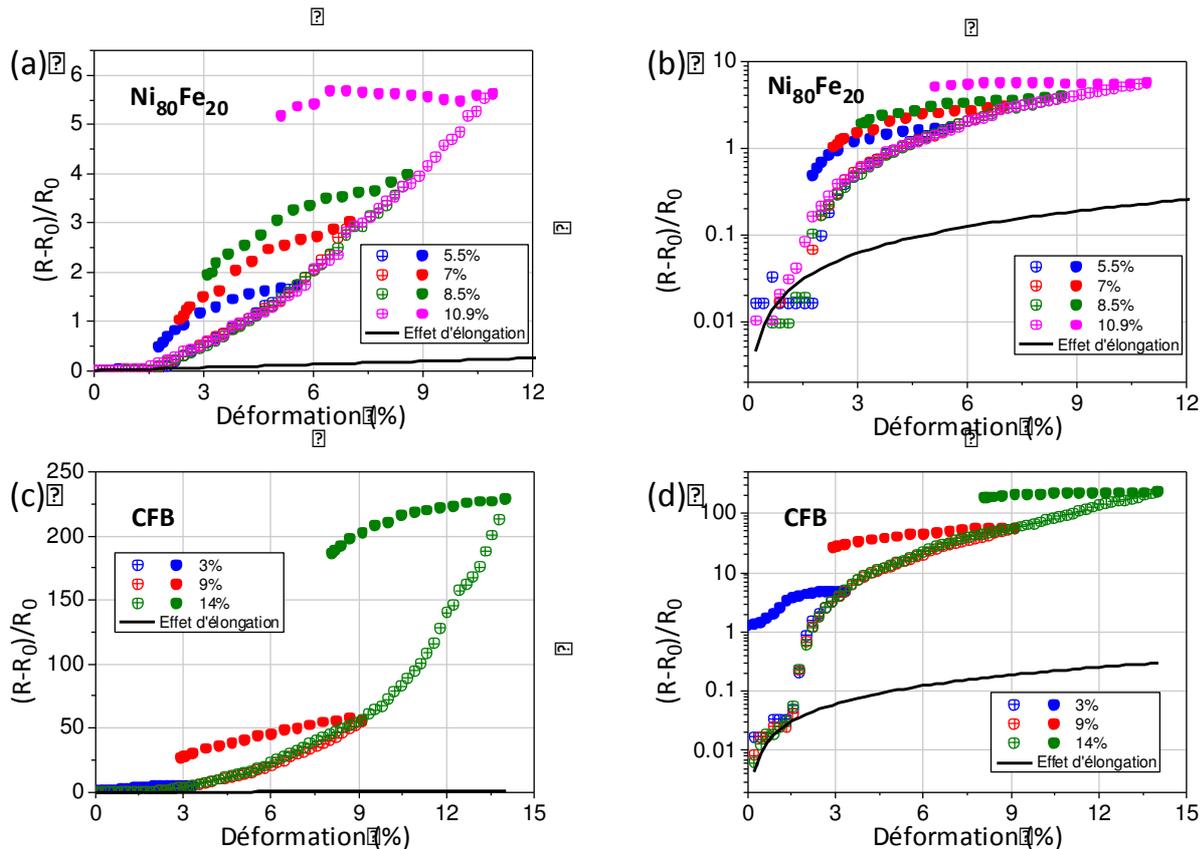


Figure 4.15 : Evolution de la résistivité en fonction de la déformation ε pour différents ε_M dans le cadre des films de Ni₈₀Fe₂₀ ((a) échelle linéaire et (b) échelle logarithmique) et CoFeB ((c) échelle linéaire et (d) en échelle logarithmique).

La figure 4.15 montre les résultats en échelle linéaire et logarithmique. La fissuration a un effet tel sur la conductivité électrique que l'échelle logarithmique est préférable pour visualiser l'initiation du phénomène. On s'aperçoit qu'aux premières valeurs, les valeurs mesurées suivent la courbe d'évolution théorique $\varepsilon^2 + 2\varepsilon$ présentée dans le chapitre précédent, qui décrit seulement l'écartement des contacts électriques. Néanmoins ces valeurs augmentent brusquement, et les courbes expérimentales obtenues s'écartent de la courbe noire dès lors que la fissuration est initiée. Ces valeurs sont de 1.8 % dans le cas du CFB et du Ni₈₀Fe₂₀ en bon accord avec les expériences d'AFM *in situ*. Ensuite la résistance électrique augmente avec la multiplication de la densité de fissures et n'atteint jamais véritablement un

plateau malgré la saturation de la densité de fissures. Ceci est sans doute dû à la variation de largeur des fissures existantes, ainsi qu'à leur profondeur. Globalement, on voit que la résistance électrique plus importante dans le cas du CoFeB, ce qui s'interprète par une densité de fissures plus importante.

Après avoir atteint les valeurs maximales de déformation, nous nous sommes intéressés à l'évolution de la résistance électrique lors des décharges. Pour les deux matériaux, on voit que le caractère partiellement réversible s'estompe avec ϵ_M . En effet, le phénomène de refermeture des fissures ne peut d'opérer que si le substrat a un retour élastique suffisant. C'est le cas lorsque ϵ_M est en deçà ou dépassant peu la limite élastique du Kapton®. Mais même lorsque la refermeture s'opère (observée généralement par AFM *ex situ* jusqu'à $\epsilon_M=8\%$), il est clair que la résistance électrique ne retrouve jamais sa valeur initiale pour des raisons de fermeture partielle et de débris de fissures.

4. Décrolements des films minces

Chaque courbe représentée sur la figure 4.17 représente la densité surfacique de cloques de tous les matériaux élaborés dans le cadre de cette expérience, ainsi qu'une comparaison entre les 3 matériaux, pour une épaisseur de 20 nm, alors que la figure 4.18 montre les évolutions dans le cas des matériaux de 5 nm. Pour discerner petites ondulations en bord de fissures et véritables décrolements, nous avons défini un critère de hauteur minimum (hormis les impuretés évidentes) correspondant à la moitié de l'épaisseur du film.

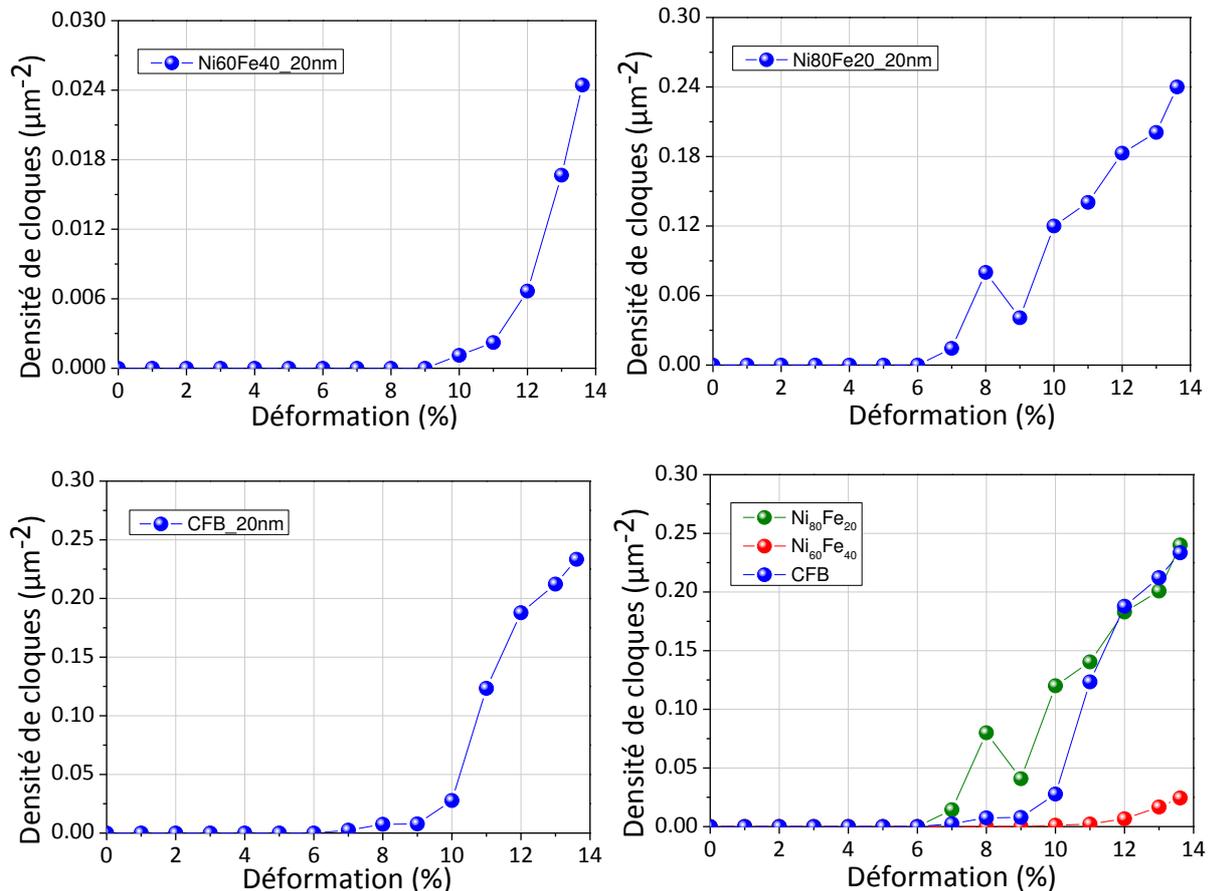


Figure 4.17 : Evolution de la densité de cloques des films élaborés de 20 nm d'épaisseur.

On peut s'apercevoir que pour chacun des films, cette valeur augmente brusquement après 7-8% de déformation, valeurs pour lesquelles la densité linéique de fissures a généralement atteint son plateau et qui correspond au domaine plastique du substrat. Dans le cas des échantillons de 20 nm d'épaisseur, on observe que la densité de cloques est extrêmement faible pour le Ni₆₀Fe₄₀, par rapport aux deux autres matériaux. *Suo et al.* [17], ont montré ce comportement dans le cas d'une rupture ductile. De plus, il est à noter en comparaison entre les résultats montrés sur les figures 4.17 et 4.18, dont le résultat est montré à la figure 4.19, que la densité des cloques pour les matériaux de 20 nm est beaucoup plus faible que dans le cas de ceux déposés à 5 nm. C'est assez logique puisque la plus faible épaisseur entraîne une plus forte densité de fissures qui sont elles même sources des décrolements. De plus, un effet conjoint à cela est une contrainte de compression transverse appliquée aux fragments plus importante lorsque l'épaisseur décroît.

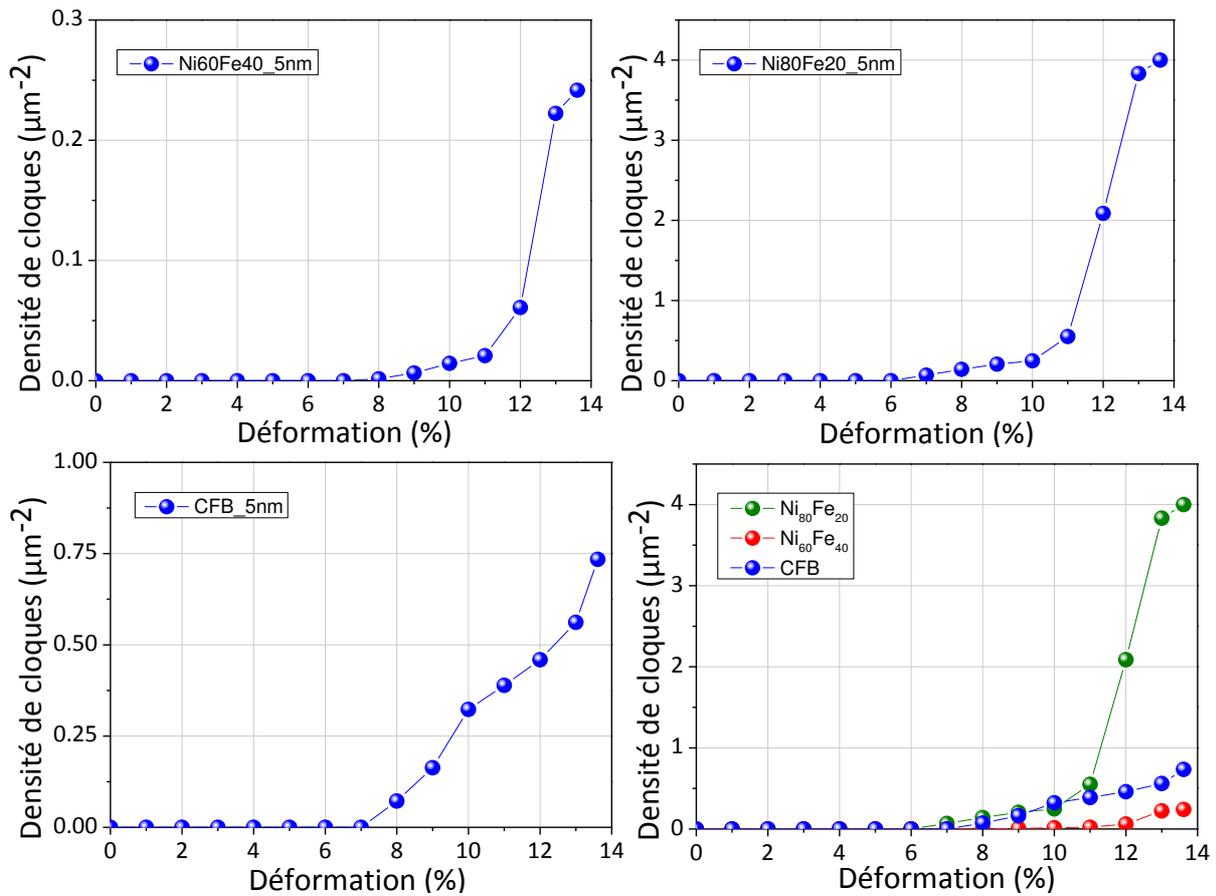


Figure 4.18 : Evolution de la densité de cloques des films élaborés de 5 nm d'épaisseur.

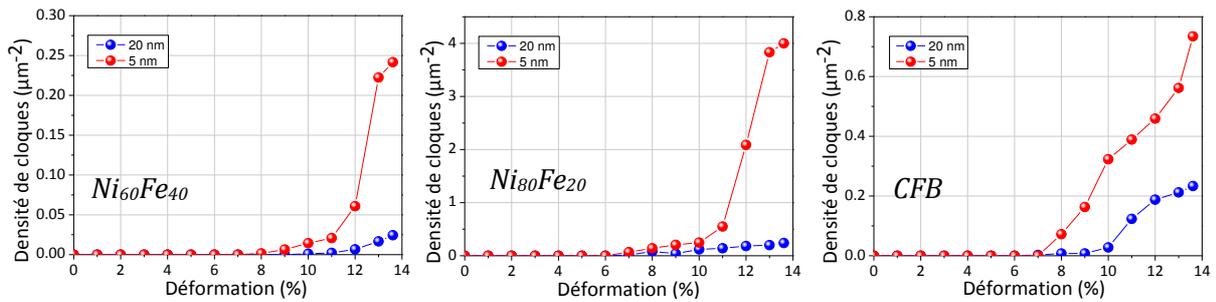


Figure 4.19 : Comparaison des densités de cloques en fonction de l'épaisseur pour le $Ni_{60}Fe_{40}$, le $Ni_{80}Fe_{20}$ et le CFB.

Nous avons déjà évoqué le fait que les cloques apparaissent généralement lorsque la densité de fissures n'évoluait plus. Ainsi, nous avons représenté sur la figure 4.20 la densité surfacique de cloques en fonction de la densité linéique de fissure, ce pour chaque matériau.

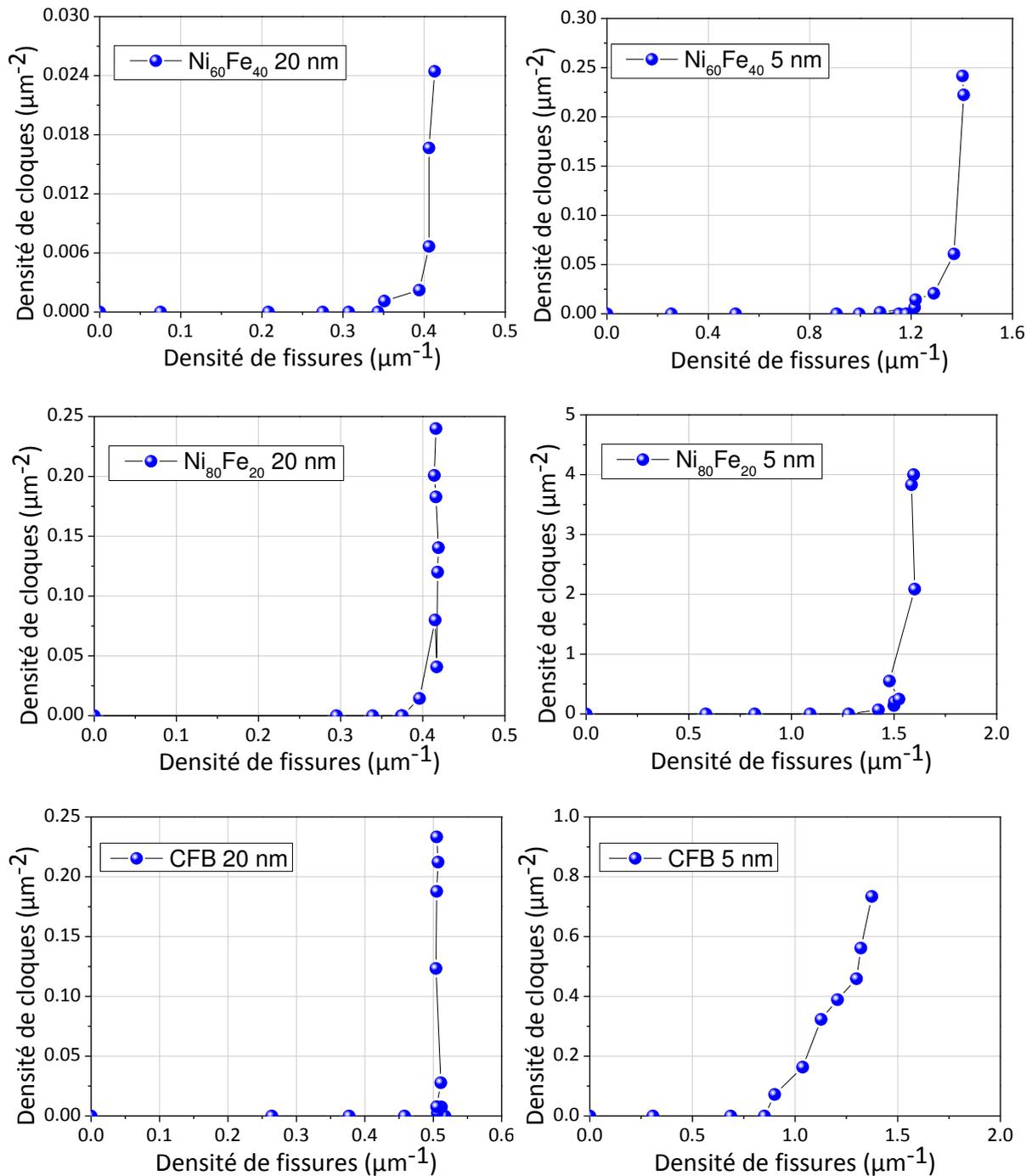


Figure 4.20 : Evolution de la densité de cloques en fonction de la densité de fissures. Deux régimes se distinguent, le premier correspond à la multiplication de la fissuration avant l'apparition et la brusque augmentation au moment où la multiplication de la fissuration ne cesse.

On observe dans tous les cas que cette densité de cloques augmente brusquement lorsque la densité de fissures cesse d'augmenter. Ainsi, il est possible de distinguer deux régimes. Un premier correspondant, à l'amorçage et la multiplication des fissures jusqu'à une valeur limite de leur densité, suivi d'un second, qui consiste en la délamination des films minces, observable par l'apparition et la brusque augmentation du nombre de cloques. C'est en accord avec les résultats présentés par J. Marthelot [10]. De plus, malgré les différences évoquées précédemment entre les différents matériaux, il semble que l'allure générale de cette courbe

soit beaucoup plus dépendante de l'épaisseur. En effet, à épaisseur donnée, la délamination se produit à des déformations similaires pour chacun des matériaux. On note une petite singularité pour le film de CoFeB de 5 nm pour lequel les deux régimes sont moins distincts, mais que nous avons des difficultés à expliquer (la densité de fissures continue à croître alors que la délamination locale est initiée).

5. Suivi individuel des cloques en fonction de la déformation

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à l'évolution géométrique des cloques lors de la déformation, du point de vue de leur hauteur ainsi que de leur largeur. Nous avons pour cela suivi 4 cloques pour chacun des matériaux, pour une épaisseur du film h_f de 20 nm. Et en prenant en compte des formes variés, à savoir rectangulaires ou triangulaires. Ces résultats vont nous permettre de tester la fiabilité du modèle de Cordill *et al.* [18] qui permet de déterminer une énergie d'adhésion film/substrat à partir de la morphologie des cloques. Les cloques suivies sont indiquées sur la figure 4.21, dans le cas de chaque matériau.

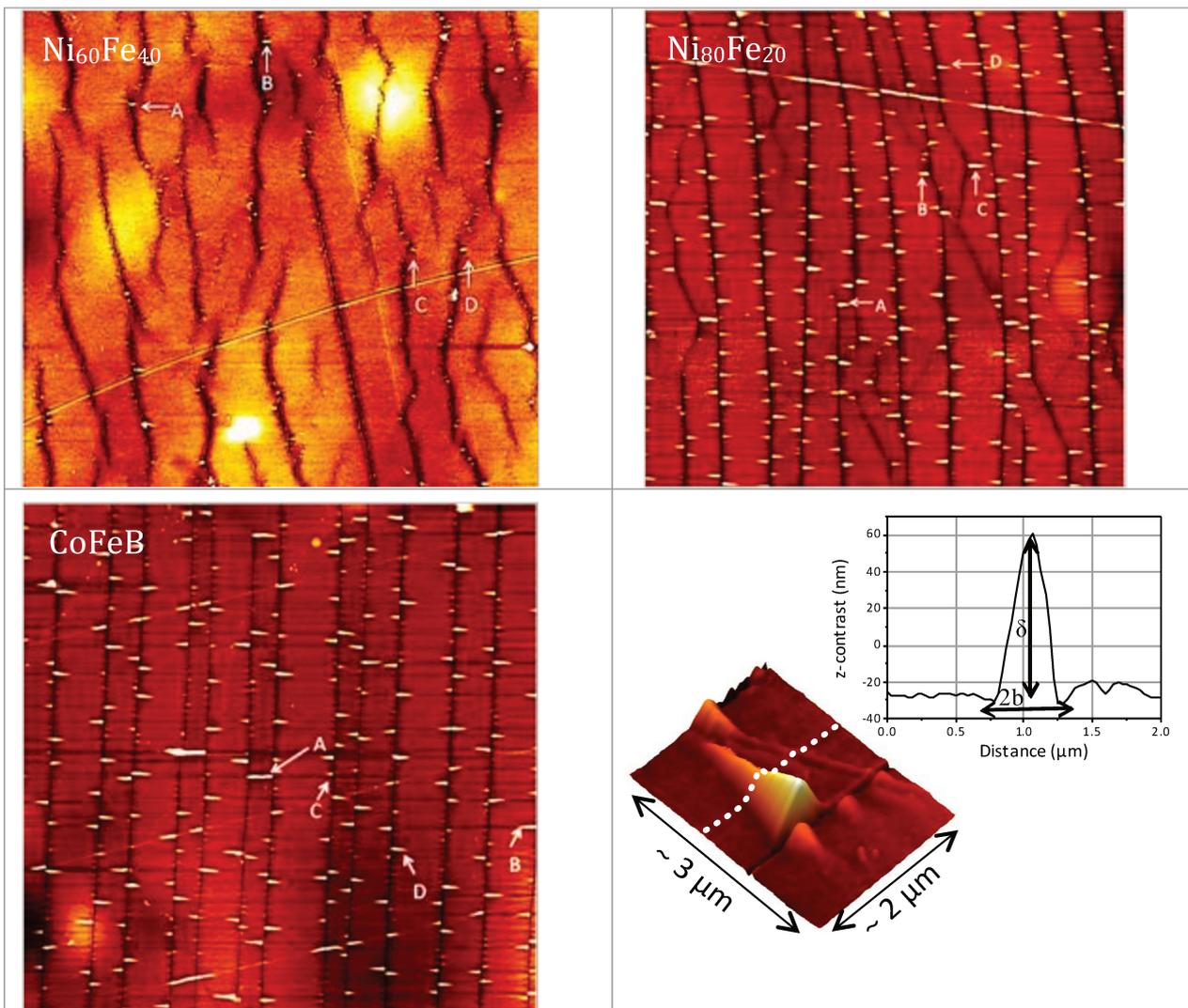


Figure 4.21: Cloques sélectionnées dans le cas du $Ni_{60}Fe_{40}$, $Ni_{80}Fe_{20}$ et CFB pour l'évaluation de la dimension des cloques en fonction de la déformation du système film/substrat. En bas à droite : illustration de la mesure de profil prise au milieu de la cloque.

On remarque par ailleurs que les cloques avec une forme rectangulaire sont plus rares que celle de forme triangulaire, celles-ci ont la particularité de se former sur toute la distance séparant deux fissures et sont le fruit d'une coalescence de deux cloques triangulaires. Dans le cas des cloques de forme triangulaire, nous avons relevé les paramètres tel que la hauteur de la

cloque, au milieu de celle-ci comme illustré sur la figure 4.21. Nous avons représenté sur la figure 4.22, le profil d'une cloque rectangulaire et triangulaire sur toute sa longueur, à savoir dans la direction perpendiculaire à celle des fissures. Dans le premier cas (cloques de forme rectangulaire), on voit que la hauteur est presque constante sur toute la longueur.

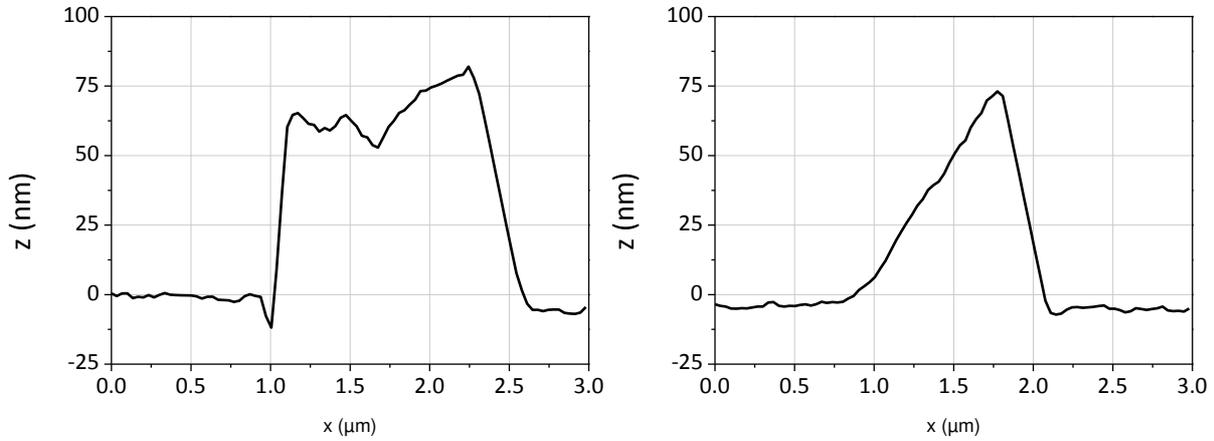


Figure 4.22 : Profil des cloques dans la direction perpendiculaire au sens de la fissuration, et donc dans la longueur de la cloque.

Les figures 4.22, 4.23 et 4.24 montrent le suivi de l'évolution de la largeur des cloques. De toute évidence, la largeur des cloques évolue très peu que ce soit lors de la charge ou de la décharge, ceci pour chaque matériau (entre 200 et 400 nm suivant les matériaux). En revanche, pour ce qu'il en est de l'évolution de la hauteur des cloques (figures 4.25, 4.26 et 4.27), nous pouvons observer une évolution en fonction de la déformation pour chaque matériau (croissance lors de la charge et décroissance lors de la décharge). Il est également possible de comparer la hauteur maximale des cloques entre le $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ et les deux autres matériaux, les hauteurs atteintes sont autour de 40 nm, contrairement aux 2 autres matériaux où celles-ci sont d'une centaine de nanomètres.

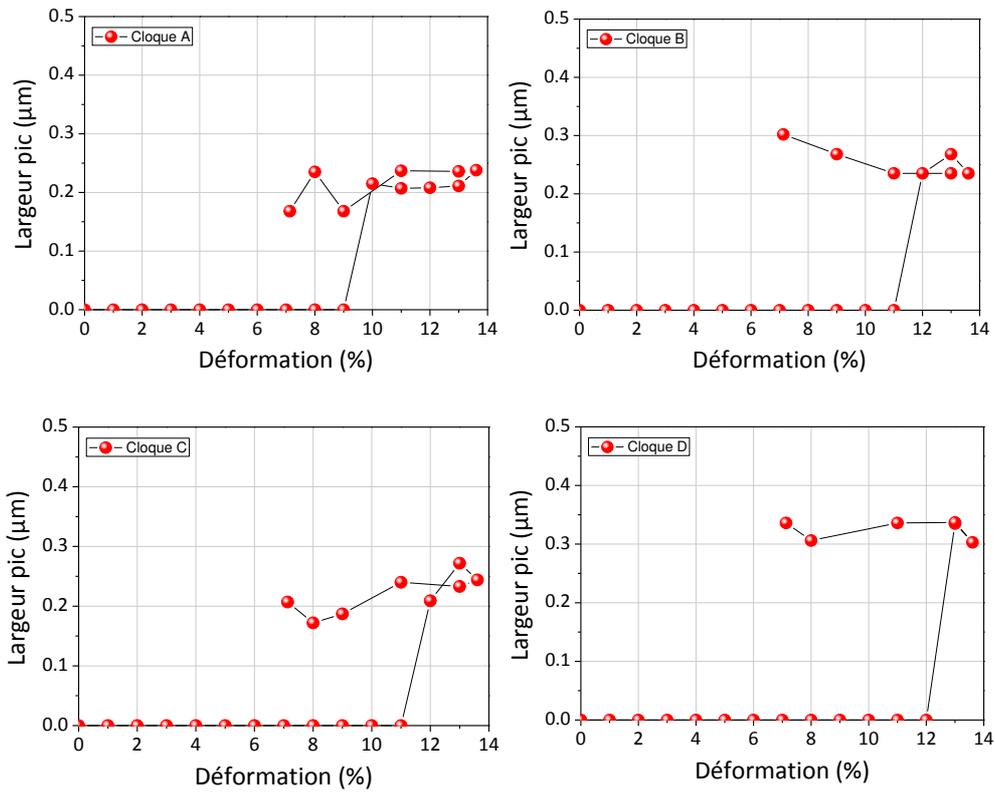


Figure 4.23 : Largeur des cloques suivies dans le cas du $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$.

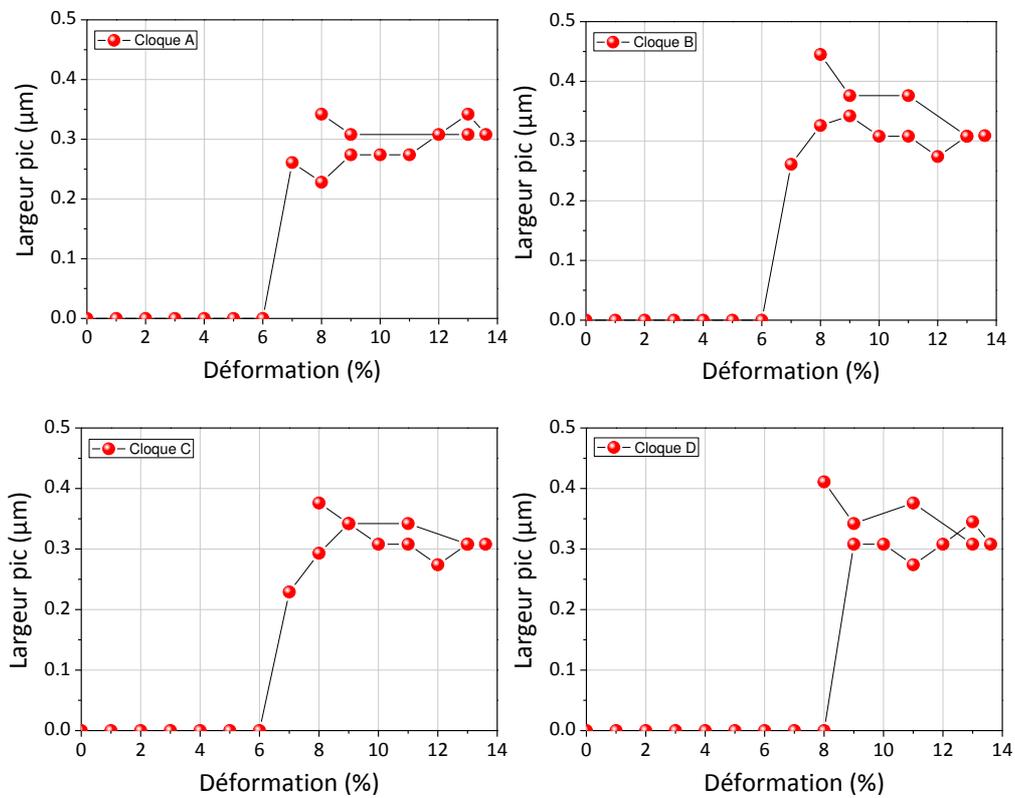


Figure 4.24 : Largeur des cloques suivies dans le cas du $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$.

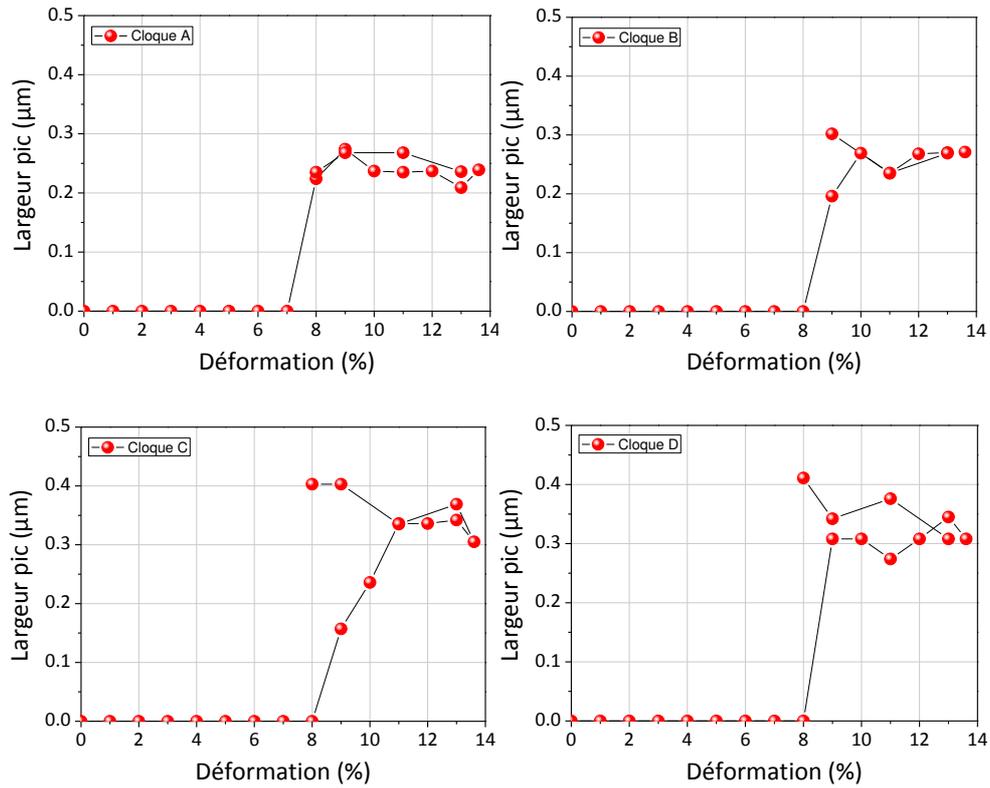


Figure 4.25 : Largueur des cloques dans les films de CoFeB.

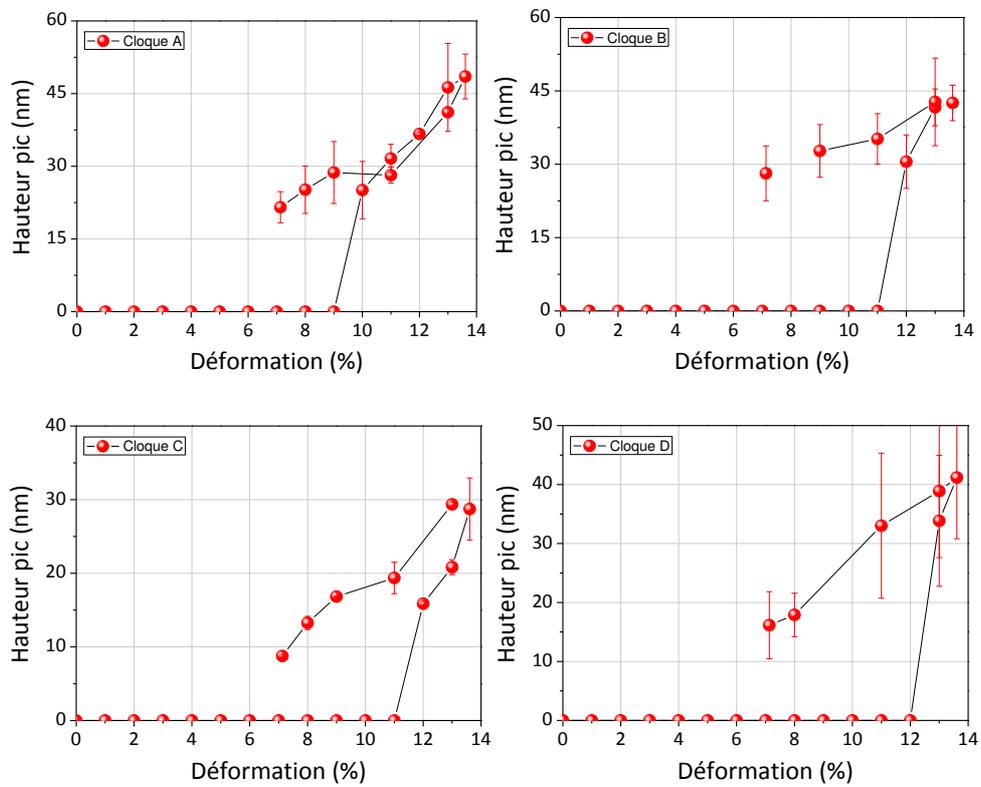


Figure 4.26 : Hauteur des cloques suivis dans le cas du $Ni_{60}Fe_{40}$.

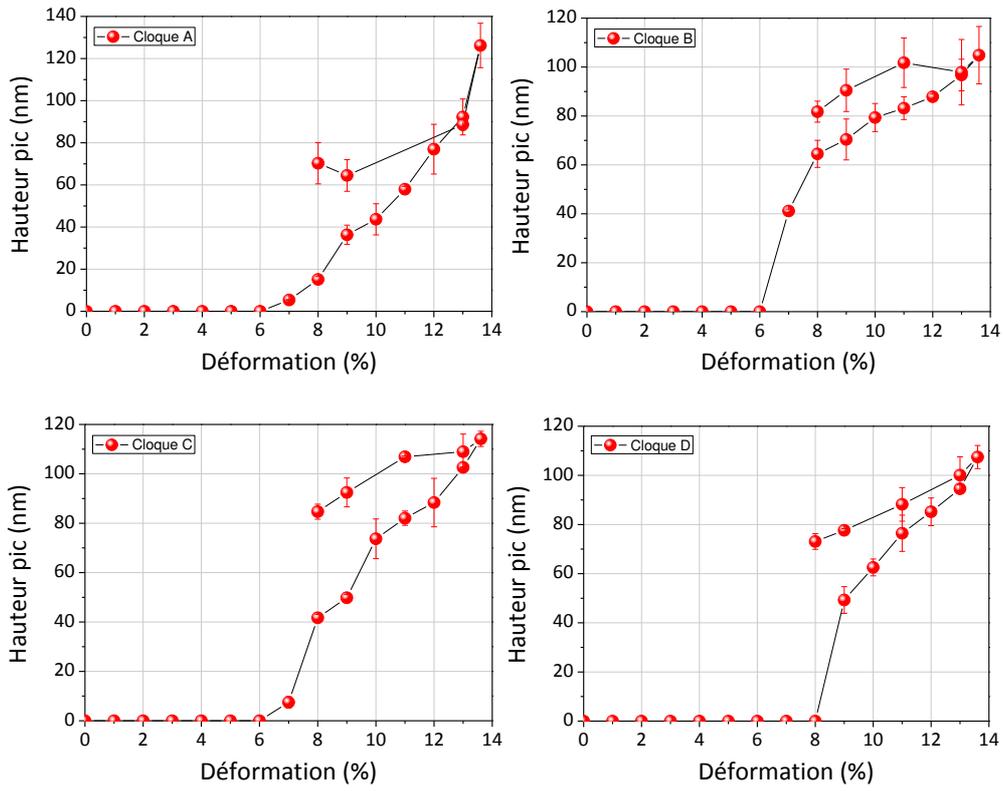


Figure 4.27 Hauteur des cloques suivis dans le cas du $Ni_{80}Fe_{20}$.

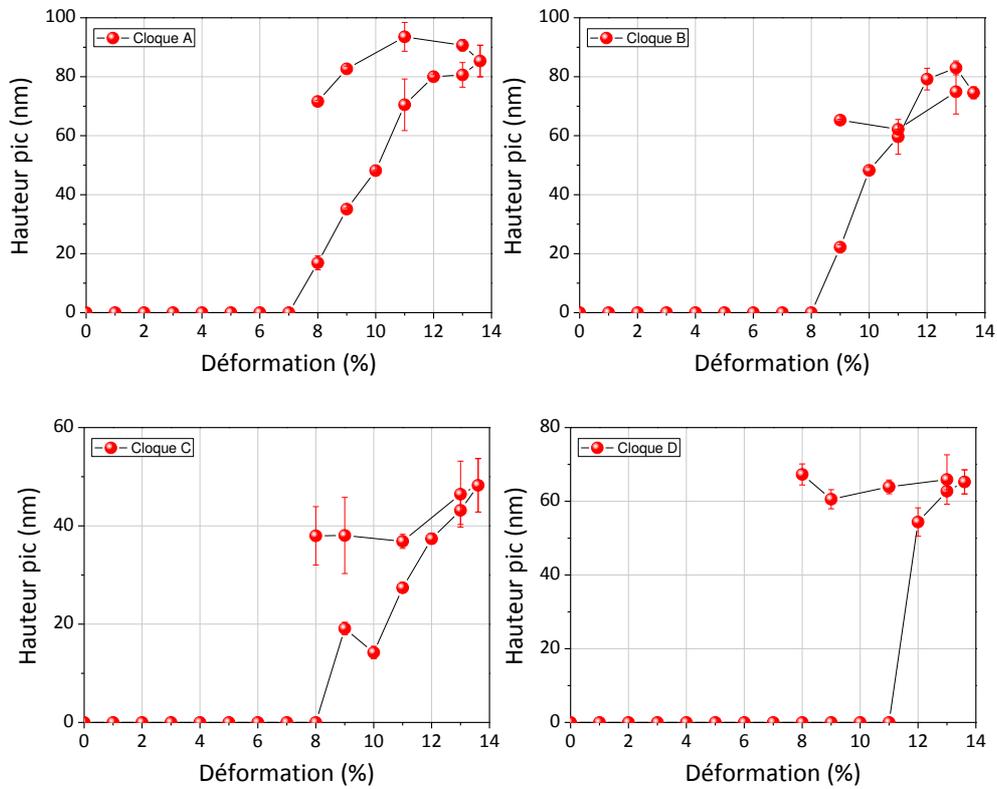


Figure 4.28 : Hauteur des cloques suivis dans le cas du CoFeB.

Il est à noter ici qu'une énergie d'adhésion élevée favoriserait une cloque plus courte, alors qu'une énergie de flexion élevée favorise l'obtention d'une cloque allongée [10]. Afin d'évaluer l'adhésion du film au substrat, nous avons appliqué le modèle de Cordill [18] à nos mesures. Dans ce modèle, on considère un film (E_f, ν_f) d'épaisseur h sur un substrat flexible (E_s, ν_s) que l'on déforme le long de la direction x , avec une déformation notée ε_x , conduisant à une contraction dans la direction y , causé par l'effet Poisson, noté ε_y et s'exprimant par :

$$\varepsilon_y = -\nu_{sub}^* \varepsilon_x < 0$$

Le film étant supposé plat, il est considéré que si l'on applique une charge dans la direction longitudinale, provoquant une déformation ε_t , on observe une contraction dans le plan transverse, avec une déformation $\varepsilon_t, \nu_{sub}^* = \frac{\varepsilon_l}{\varepsilon_t}$. De même, la différence de coefficient de Poisson entre le film et le substrat entraîne une courbure de l'échantillon perpendiculairement à l'axe de traction (axe x). On considère même la déformation moyenne sur toute l'épaisseur, noté ε_y . Il se forme alors des fissures le long de la direction y , perpendiculairement à l'axe de traction, formant des bandes de largeur constante théoriquement, cela est suivie par la formation de cloques d'une largeur $2b$, d'une épaisseur δ et espacées d'une longueur B , comme sur la figure 4.29-a) et illustré par nos expériences sur la figure 4.21.

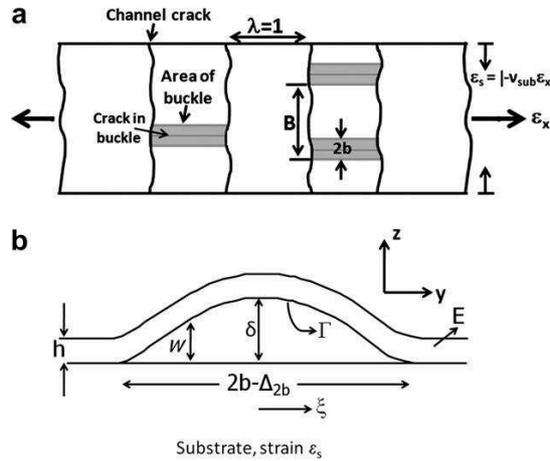


Figure 4.29 : Schéma de la surface supérieure d'un film fissuré et délaminé sous l'application d'une traction, indiquant des paramètres importants pour le modèle. (b) coupe transversale d'une cloque [17].

On considère avant ce flambage que les contraintes sont de types membranaires, σ_x^m, σ_y^m , alors qu'au moment du flambage la contrainte critique $\sigma_{y,crit}^m$ s'exprime par :

$$\sigma_{y,crit}^m = \frac{\pi^2 E_f'}{12} \left(\frac{h}{b}\right)^2$$

Avec E_f' , le module de Young réduit du film défini par la relation :

$$E_f' = \frac{E_f}{(1 - \nu_f^2)}$$

En émettant l'hypothèse forte que le film n'est pas soumis aux contraintes résiduelles de dépôt et que celui-ci s'est désadhéré du substrat sur une largeur de $2b$, la déformation critique $\varepsilon_{y,crit}^m$ s'exprime par :

$$\varepsilon_{y,crit}^m = \frac{h^2}{12} \left(\frac{h}{b}\right)^2$$

La hauteur δ de la cloque semble croître également dans la direction z . Du fait de la formation des fissures en amont de celle des cloques, on néglige σ_x^m alors que :

$$\sigma_y^m = \sigma_{y,crit}^m$$

Le déplacement w hors du plan après cloquage vaut :

$$w = \frac{\delta}{2} \left(1 + \cos\left(\frac{\pi}{b}\xi\right)\right)$$

En considérant l'intervalle où $-b < \xi < b$, la réduction de la largeur de la cloque $2b$ vaut :

$$\Delta_{2b} = \frac{1}{2} \int_{-b}^b \left(\frac{dw}{d\xi}\right)^2 d\xi = \frac{\pi^2}{8} \frac{\delta^2}{b^2} b$$

Alors que ε_s , la déformation due à l'effet de la contrainte de compression vaut, dans ce même intervalle :

$$\varepsilon_s = \varepsilon_{y,crit} + \frac{\pi^2}{16} \left(\frac{\delta}{b}\right)^2$$

En combinant cette valeur avec la déformation critique membranaire, on obtient :

$$\frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_{y,crit}} = 1 + \frac{3}{4} \left(\frac{\delta}{h}\right)^2$$

D'un point de vue énergétique, On considère l'énergie de déformation potentielle totale notée TPE, vaut :

$$TPE = U_{2b} - U_{B-2b} + 2b\Gamma$$

Avec U_{2b} l'énergie de déformation due à la flexion, qui dans l'intervalle $-b \leq \xi \leq b$, vaut :

$$U_{2b} = bhE'_f (2\varepsilon_s \varepsilon_{y,crit} - \varepsilon_{y,crit}^2)$$

U_{B-2b} l'énergie de déformation de la partie où il n'y a pas de cloques :

$$U_{B-2b} = (B - 2b)E'_f h \frac{\varepsilon_s^2}{2}$$

Et $2b\Gamma$ l'énergie d'adhésion, avec Γ la valeur de cette énergie. Si l'on développe la valeur de l'énergie potentielle totale, on obtient :

$$TPE = BhE'_f \frac{\varepsilon_s^2}{2} - 2bhE'_f \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_{y,crit})^2}{2} + 2b\Gamma$$

De même il y a une dissipation de l'énergie D_b avec :

$$D_b = Fb = \frac{\partial TPE}{\partial b} b$$

F étant la force thermodynamique. A l'équilibre, cette force F est nulle, et nous obtenons alors :

$$\Gamma_{crit}^* = \varepsilon_{y,crit}^2 \left(\frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_{y,crit}} - 1 \right) \left(\frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_{y,crit}} + 3 \right)$$

Nous pouvons remonter aux valeurs de Γ en fonction de δ , b ou h, valeurs pouvant être déterminées expérimentalement en introduisant un paramètre α , avec :

$$\Gamma = \frac{h\alpha}{0.657} \left(\frac{E}{1-\nu^2} \right)$$

Avec α paramètre de fit de la courbe $\left(\frac{\delta}{h}\right)^{0.5}$ en fonction de $\frac{b}{h}$ dont l'expression est :

$$\left(\frac{\delta}{h}\right)^{0.5} = (2\alpha)^{0.25} \left(\frac{b}{h}\right) \left[1 + \sqrt{1 + \frac{3}{4} \alpha \left(\frac{b}{h}\right)^4} \right]^{-0.25}$$

Afin d'évaluer le modèle de Cordill, pour déduire l'énergie d'adhésion, nous avons suivi 50 cloques représentées sur la figure 4.30. La figure 4.31 représente le nuage de points obtenu dans le cas d'un film de CoFeB de 20 nm pour tous les états de déformation (de la charge et de la décharge) pour lesquels nous avons suffisamment de cloques et de données.

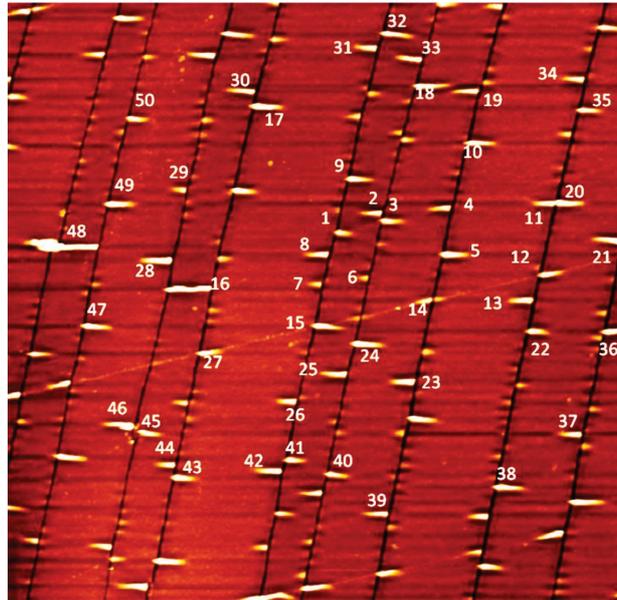


Figure 4.30 : Surface du CFB avec l'indication des cloques suivies, pour l'évaluation de l'énergie d'adhésion.

Ce nuage de points montre la grande dispersion de la morphologie des cloques que ce soit pour la hauteur ou la largeur. Il faut donc un nombre importants de cloques pour pouvoir en tirer une information statistique. En s'appuyant sur le modèle de Cordill, et en traçant les relations reliant δ/h à b/h , nous avons pu estimer le paramètre α et remonter à la valeur de l'énergie d'adhésion apparente du matériau Γ (figure 4.32). Ces estimations ont été effectuées en prenant la partie basse, haute, et moyenne du nuage de points. Il est généralement reporté

que la valeur basse offre les valeurs les plus réalistes de l'énergie d'adhésion, notamment à cause de la déformation plastique au sein des cloques, voire de la rupture en sommet de cloques (non observé dans notre cas) dont il n'est pas tenu compte dans ce modèle [18].

La figure 4.32 montre que l'énergie d'adhésion apparente calculée à partir de ce modèle est fortement dépendante de l'état de déformation macroscopique du système. Celle-ci semble croître lors de la charge et décroître lors de la décharge, ce qui n'est pas raisonnable puisque l'adhésion est un paramètre intrinsèque à l'interface film/substrat. Cette variation de l'énergie d'adhésion apparente se produit pour les valeurs basse, moyenne et haute du nuage de point. De plus, on voit que la valeur déduite est extrêmement sensible à l'ajustement du modèle (plus d'un ordre de grandeur entre la partie haute et basse). D'un point de vue pragmatique, le point rassurant pour notre système CoFeB/Kapton® est que les valeurs basses que l'on peut en déduire sont caractéristique d'une bonne adhésion pour des systèmes métal/polymère (quelques $J.m^{-2}$).

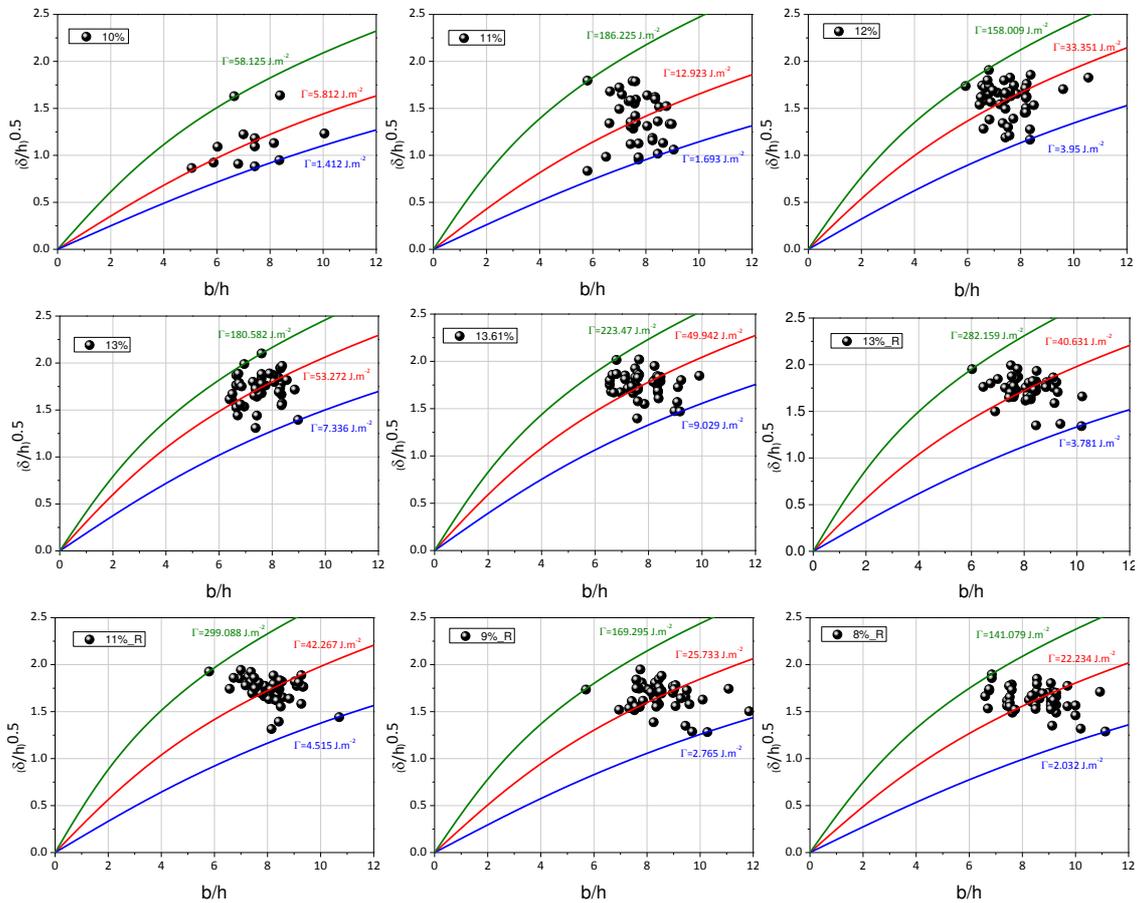


Figure 4.31 : Diagramme $\left(\frac{\delta}{h}\right)^{0.5}$ en fonction de $\frac{b}{h}$ pour les cloques suivies du film mince de CoFeB (20 nm) à chaque déformation.

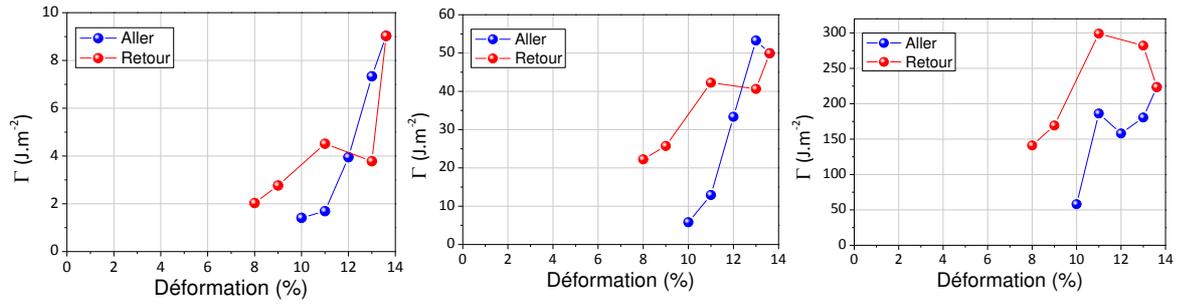


Figure 4.32 : Evolution de l'énergie d'adhésion Γ en fonction de la déformation pour des valeurs minimales (gauche), moyennes (centre) et maximales (droite) de α .

La figure 4.33 montre la surface occupée par les nuages de points correspondant à plusieurs états de déformation macroscopique. On observe le phénomène expliqué précédemment, à savoir que la valeur de δ croît avec la déformation, mais la valeur de b ($2b$ étant la largeur de la cloque à son milieu), ce qui induit des erreurs sur l'énergie d'adhésion apparente. C'est d'autant plus important que les estimations faites dans la littérature, utilisant ce modèle, le sont souvent à l'état résiduel après des essais à très grandes déformations [20-24], impliquant une déformation plastique résiduelle du substrat forcément influente sur la valeur d'énergie d'adhésion mesurée. Des modèles plus précis sur les modes de ruptures inhérents à la délamination doivent être envisagés, tenant compte notamment de la mixité modale.

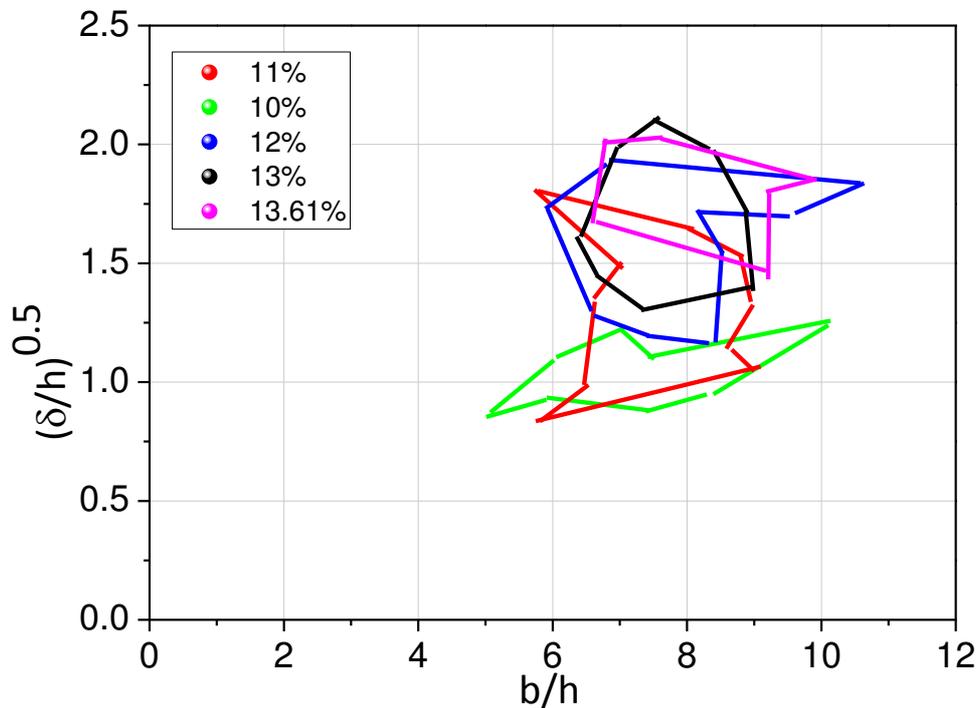


Figure 4.33 : Surfaces occupées par les nuages de point obtenu dans le cas du modèle de Cordill pour chaque déformation durant la charge.

6. Essais de traction *ex situ*

En supplément des essais *in situ* précédemment présentés, des essais *ex situ* ont été réalisés pour l'évaluation des propriétés magnétiques en fonction de la déformation et de l'épaisseur, les résultats concernant ces propriétés seront présentés dans le chapitre 5. Dans cette section, nous montrons quelques résultats de ces essais qui permettront de mieux discuter les propriétés magnéto-mécaniques étudiées dans le prochain chapitre. Nous reportons des résultats sur l'évolution de la densité de fissures en fonction de l'épaisseur, pour des films de 10, 20, 50 et 100 nm.

La figure 4.34 montre la multiplication des fissures pour chaque matériau en fonction de la déformation pour toutes les épaisseurs (10, 20, 50, 100 nm). Dans le cas des 3 matériaux, on observe que les densités linéiques de fissures atteintes croissent lorsque l'épaisseur diminue. Ce résultat est en accord avec ceux obtenus précédemment, dans le cadre de la comparaison entre des films de 5 et 20 nm.

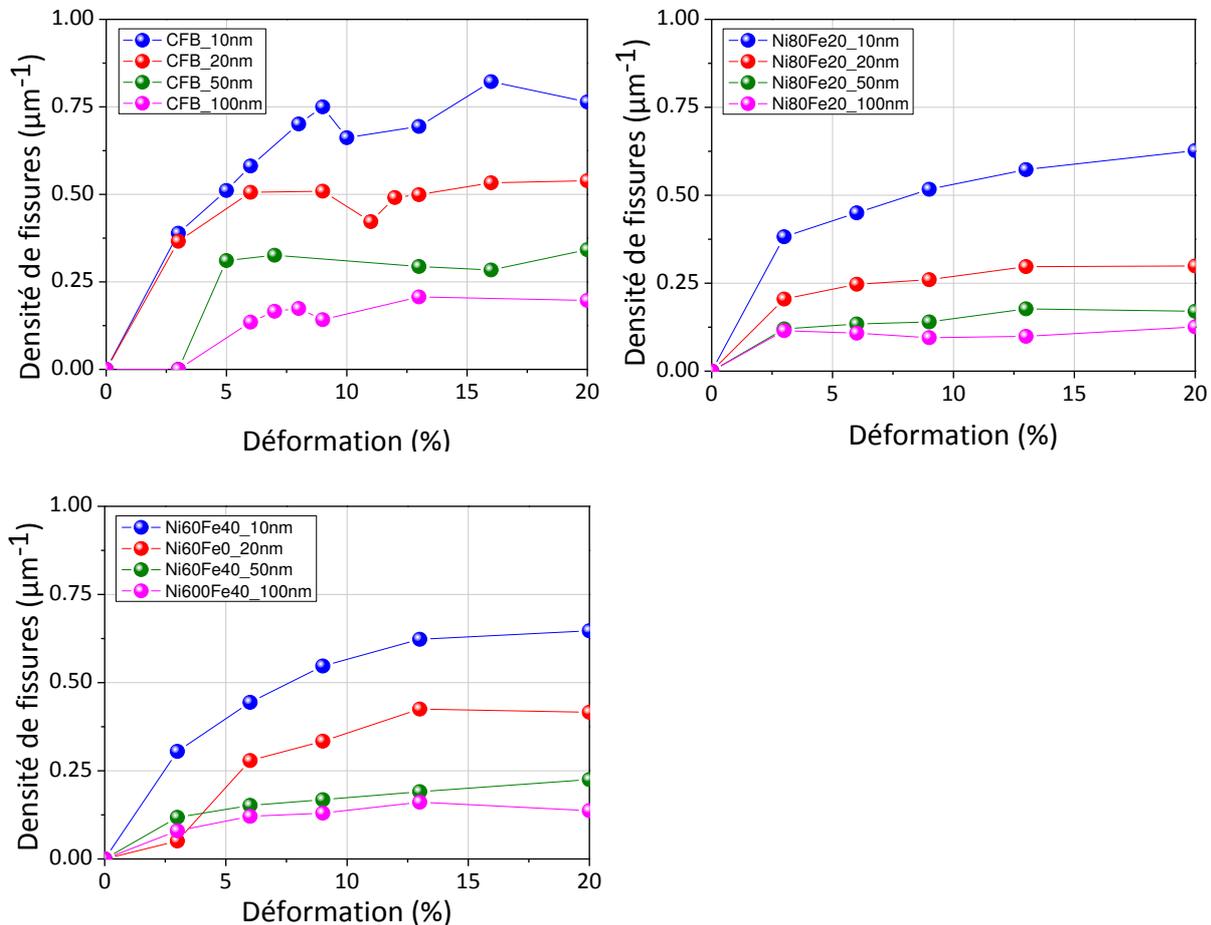


Figure 4.34 : Evolution de la densité linéique de fissures avec la déformation pour les 3 matériaux à des épaisseurs de 10, 20, 50 et 100 nm.

R. M. Niu *et al.*[19] ont étudié l'effet de l'épaisseur de film Cu déposés sur des substrat de polyimides de 125 μm d'épaisseur, sur la fissuration des films avec des déformation

appliquées allant jusqu'à 40 %, avec des épaisseurs de film de 700, 340, 275, 100 et 60 nm. Ils ont montré cette même variation. De plus, on peut voir sur la figure 4.35, l'évolution de la densité surfacique des cloques pour chaque matériau pour des épaisseurs de 10, 20 et 50 nm en fonction de la déformation, confirmant les résultats obtenus précédemment. Nous n'avons pas représenté la courbe pour l'épaisseur de 100 nm, les cloques étant bien moins nombreuses que pour 50 nm.

Enfin, la figure 4.36 montre les courbes de densité surfacique de cloques en fonction de la densité linéique de fissures. Même si le comptage des fissures en mode *ex situ* est plus complexe, à cause de la fermeture partielle ou totale de certaines, on retrouve globalement la présence de ces deux régimes distincts, à savoir la multiplication des fissures dans un premier temps, puis la délamination locales dans un deuxième temps.

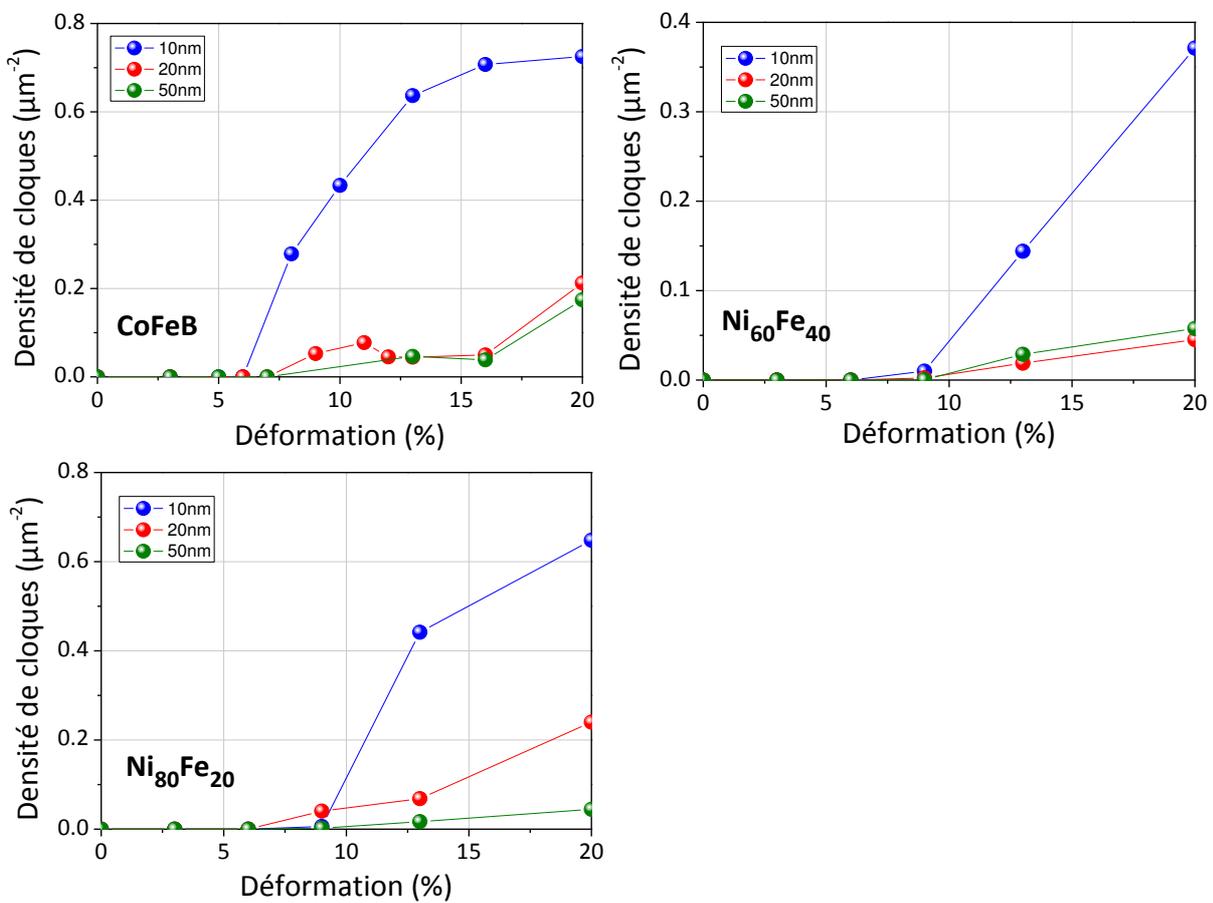


Figure 4.35 : Evolution de la densité surfacique de cloques en fonction de la déformation pour les 3 matériaux à des épaisseurs de 10, 20 et 50 nm.

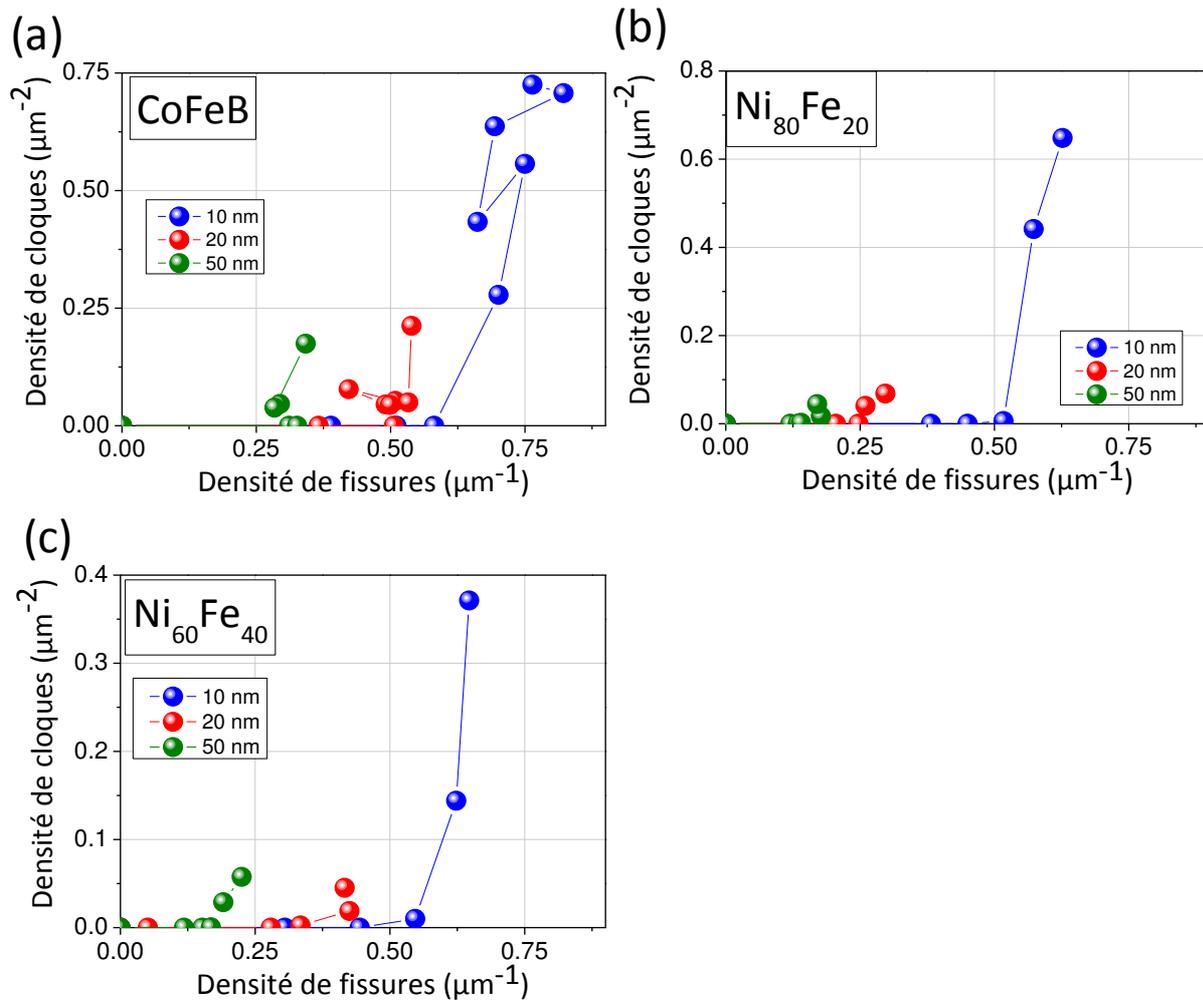


Figure 4.36 : Densité de cloques en fonction de la densité de fissures pour le (a) $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$, (b) $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, (c) CoFeB

7. Etude annexe : vieillissement des fissures

De manière un peu annexe, nous avons suivi l'effet temporel sur la fissuration pendant une période de 5 mois et demi, à partir des échantillons suivis de manière *in situ*. La figure 4.37 montre ainsi l'évolution de la profondeur moyenne des fissures dans le cas du CoFeB, du Ni₆₀Fe₄₀ et du Ni₈₀Fe₂₀ en fonction du nombre de jour (*j*). Nous observons ici que la profondeur diminue très rapidement, voir même que les fissures se referment dans le cas de certaines zones, formant ainsi des bourrelets. La figure 4.38 montre l'évolution d'un profil 1D sur 30 jours dans le cas des 3 matériaux, illustrant la fermeture progressive des fissures.

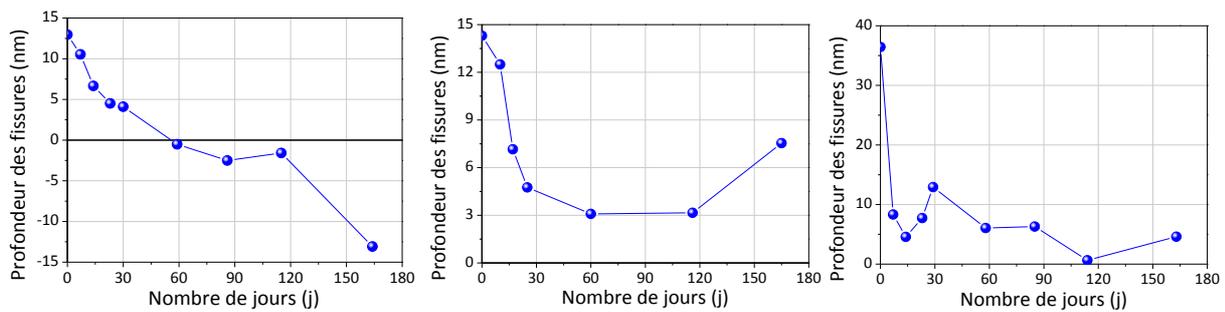


Figure 4.37 : Evolution temporelle de la profondeur moyenne des fissures dans le cas du CoFeB (gauche), du Ni₆₀Fe₄₀ (centre) et du Ni₈₀Fe₂₀ (droite) pour une épaisseur de 20 nm.

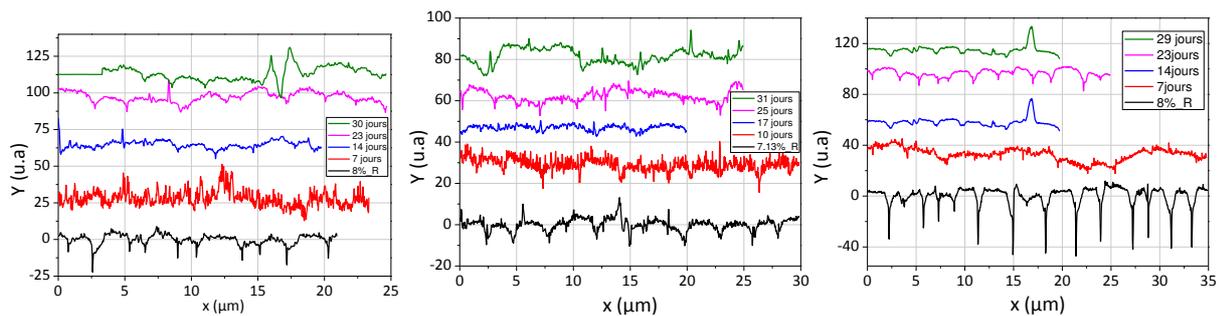


Figure 4.38 : Evolution temporelle de la profondeur moyenne des fissures caractérisée par l'évolution des profil 1D dans le cas du CoFeB (gauche), du Ni₆₀Fe₄₀ (centre) et du Ni₈₀Fe₂₀ (droite) pour une épaisseur de 20 nm.

Principaux résultats en bref

- (i) Pour chaque matériau étudié (CoFeB, Ni₈₀Fe₂₀, Ni₆₀Fe₄₀), les essais *in situ* et *ex situ* montrent que la densité de fissures est inversement proportionnelle à l'épaisseur, à déformation macroscopique donnée.
- (ii) L'initiation des fissures dans le CoFeB est retardée pour les épaisseurs les plus grande (50 nm et 100 nm).
- (iii) A partir d'une déformation de 7-8%, la densité de fissures a généralement atteint la saturation. Démarre alors un nouveau régime caractérisé par le décollement localisé des films et l'approfondissement des fissures au delà de l'interface film/substrat.
- (iv) Les deux régimes « fissuration » et « décollement » se sont produits distinctement ou presque dans la majorité des cas.
- (v) Le suivi individuel des cloques montre que la mesure de l'énergie d'adhésion apparente par le modèle de Cordill, pour le système CoFeB (20 nm) était très dépendante de l'état de déformation macroscopique du système.

Bibliographie

- [1] Y. Leterrier, J. Andersons, Y. Pitton & J.A. Månson, "Adhesion of silicon oxide layers on poly(ethylene terephthalate). II: Effect of coating thickness on adhesive and cohesive strengths", *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics* 35 (9), 1463–1472 (1997).
- [2] T. Jiang, R. Huang & Y. Zhu, "Interfacial Sliding and Buckling of Monolayer Graphene on a Stretchable Substrate", *Advanced Functional Materials* 24, 396–402 (2013).
- [3] Y. Sun, W.M. Choi, H. Jiang, Y.Y. Huang, J.A. Rogers, "Controlled buckling of semiconductor nanoribbons for stretchable electronics", *Nature Nanotechnology* 1:201–207 (2006).
- [4] D.-H. Kim, J.-H. Ahn, W. M. Choi, H.-S. Kim, T.-H. Kim, J. Song, Y. Y. Huang, Z. Liu, C. Lu, J. A. Roger, "Stretchable and Foldable Silicon Integrated Circuits", *Science* 320 (5875), 507 (2008).
- [5] Q. Cao, H.-S. Kim, N. Pimparkat, J. P. Kulkarni, C. Wang, M. Shim, K. Roy, M. A. Alam, J. A. Rogers, "Medium-scale carbon nanotube thin-film integrated circuits on flexible plastic substrates", *Nature* 454:495–500 (2008).
- [6] H. Jiang, D.Y. Khang, J. Song, Y. Sun, Y. Huang, J.A. Rogers, "Finite deformation mechanics in buckled thin films on compliant supports", *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 104:15607–15612 (2007).
- [7] H. C. Ko, M. P. Stoykovich, V. Malyarchuk, W. M. Choi, C.-J. Yu, J. B. Geddes, J. Xiao, S. Wang, Y. Huang, J. A. Rogers, "A hemispherical electronic eye camera based on compressible silicon optoelectronics" *Nature* 454:748–753 (2008).
- [8] D. Y. Khang, H. Jiang, Y.Y. Huang, J. A. Rogers, "A Stretchable Form of Single-Crystal Silicon for High-Performance Electronics on Rubber Substrates", *Science* 311:208–212 (2006).
- [9] Y. Xiang, T. Li, Z. Suo, J. Vlassak, "High ductility of a metal film adherent on a polymer substrate", *APPLIED PHYSICS LETTERS* 87, 161910 (2005).
- [10] J. Marthelot, « Rupture et délamination de films minces ». Thèse. Université Pierre et Marie Curie. 2014.
- [11] Z. Tang, B. Wang, H. Yang, X. Xu, Y. Liu, D. Sun, L. Xia, Q. Zhan, B. Chen, M. Tang, Y. Zhou, J. Wang and R.-W. Li, "Magneto-mechanical coupling effect in amorphous Co₄₀Fe₄₀B₂₀ films grown on flexible substrates", *Applied Physics Letters* 105, 103504 (2014).
- [12] T. Jörg, M.J. Cordill, R. Franz, O. Glushko, J.Winkler, C. Mitterer, "The electro-mechanical behavior of sputter-deposited Mo thin films on flexible substrates", *Thin Solid Films* 606, 45 (2016).
- [13] S. Frank, U.A. Handge, S. Olliges, R. Spolenak, "The relationship between thin film fragmentation and buckle formation: Synchrotron-based in situ studies and two-dimensional stress analysis", *Acta Materialia* 57, 1442 (2009).
- [14] J. L. Beuth, "Cracking of thin bonded films in residual tension", *International Journal of Solids and Structures*. 29, 1657 (1992).
- [15] N. J. Douville, Z. Li, S. Takayamaac and M. D. Thouless, "Fracture of metal coated elastomers", *Soft Matter* 7, 6493 (2011).
- [16] M. Cordill, O. Glushko, B. Putz, "Electro-Mechanical Testing of Conductive Materials Used in Flexible Electronics", *Frontiers in Materials* 3, 11 (2016).
- [17] Z. Suo, C.F. Shih, & A.G. Varias, "A theory for cleavage cracking in the presence of plastic flow", *Acta Metallurgica et Materialia* 41 (5), 1551–1557 (1993).
- [18] M.J. Cordill, F.D. Fischer, F.G. Rammerstorfer, G. Dehm, "Adhesion energies of Cr thin films on polyimide determined from buckling: Experiment and model", *Acta Materialia* 58 (2010).
- [19] R. M. Niu, G. Liu, C. Wang, G. Zhang, Ding, X. D., Sun, J., *Applied Physics Letters* 90, 161907 (2007).
- [20] A.A. Taylor, M.J. Cordill, L. Bowles, J. Schalko, G. Dehm, "An elevated temperature study of a Ti adhesion layer on polyimide", *Thin Solid Films* 531, 354 (2013).
- [21] K. Wu, J.Y.Zhang, P.Zhang, Y.Q.Wang, G.Liu, G.J.Zhang, J.Sun, "Fracture behavior and adhesion energy of nanostructured Cu/Mo multilayer films", *Materials Science & Engineering A* 613, 130 (2014).

- [22] K. Wu, J.Y. Zhang, G. Liu, P. Zhang, P.M. Cheng, J. Li, G.J. Zhang, J. Sun, "Buckling behaviors and adhesion energy of nanostructured Cu/X (X = Nb, Zr) multilayer films on a compliant substrate", *Acta Materialia* 61, 7889 (2013).
- [23] K. Wu, J.Y. Zhang, G. Liu, J. Li, G.J. Zhang, J. Sun, "An Easy Way to Quantify the Adhesion Energy of Nanostructured Cu/X (X = Cr, Ta, Mo, Nb, Zr) Multilayer Films Adherent to Polyimide Substrates", *Acta Metallurgica Sinica* 29, 181 (2016).
- [24] J. Tang, H. Guo, M. Zhao, J. Yang, D. Tsoukalas, B. Zhang, J. Liu, C. Xue, W. Zhang, "Highly Stretchable Electrodes on Wrinkled Polydimethylsiloxane Substrates" *Scientific Reports* 5, 16527 (2015).

Chapitre 5

Etude des propriétés magnéto-mécaniques des films minces

Sommaire

1. Caractérisation magnétique de base
 2. Détermination du coefficient de magnétostriction
 3. Comportement magnétique en grandes déformations
-

Ce chapitre est consacré à la présentation de l'évolution des propriétés magnétiques de nos films minces lorsque ceux-ci sont soumis à de grandes déformations. Avant de présenter les résultats obtenus dans ce cadre, nous allons tout d'abord déterminer les caractéristiques magnétiques de base de ces matériaux obtenus en réalisant des mesures de résonance ferromagnétique en l'absence de déformation puis en présence de petites déformations (déformations maximale de 0,1%).

1. Caractérisation magnétique de base

Dans cette sous-section, nous présentons la caractérisation standard par résonance ferromagnétique des films minces, c'est à dire en l'absence de déformations. Dans ces conditions, nous sommes capable de déterminer certains paramètres magnétiques (statiques) qui nous seront utile lorsque nous discuterons des résultats obtenus après l'application de grandes déformations. En l'absence de déformation, la fréquence du mode uniforme (précession uniforme et en phase des moments magnétiques au sein du film) ne dépend *a priori* que du facteur gyromagnétique, de l'aimantation à saturation (M_s) et de la présence éventuelle d'anisotropie magnétique (planaire ou hors-plan). La présence d'anisotropie planaire est assez facilement détectable en réalisant des mesures du champ de résonance dans le plan des films [1,2]. Néanmoins, la présence d'anisotropie hors-plan est plus complexe à détecter et nécessite la détermination de l'aimantation à saturation par une autre technique (comme la magnétométrie à échantillon vibrant) [3]. En effet, il est presque impossible de discriminer un champ d'anisotropie hors-plan d'ordre 2 (H_{perp}) du champ démagnétisant issu de la géométrie du film mince ($H_{demag} = 4\pi M_s$) car le champ de résonance dépend de $H_{demag} - H_{perp}$. Ce dernier terme est souvent appelé aimantation effective $4\pi M_{eff} = 4\pi M_s - H_{perp}$ [2]. Nous avons vérifié que les films minces que nous avons étudiés ne présente pas d'anisotropie hors-plan. Par soucis de brièveté, nous dirons que l'aimantation à saturation a été déterminée par résonance magnétique même si cela est plus complexe.

La caractérisation « standard » de films minces par résonance magnétique commence souvent par la mesure de la dépendance angulaire du champ de résonance afin de vérifier la présence d'anisotropies planaires et leurs ordres [2]. A cet égard, la figure 5.1 présente les dépendances angulaires du champ de résonance H_{res} de trois films minces (CoFeB, Ni₆₀Fe₄₀ et Ni₈₀Fe₂₀) de 20 nm d'épaisseur mesurées à 8 GHz. La différence dans la valeur moyenne du champ de résonance pour les trois matériaux est simplement due à la différence d'aimantation à saturation comme le montre le tableau 5.1. En outre, on observe clairement la présence d'une anisotropie uniaxiale (d'ordre 2) pour les trois matériaux. Il est important de noter que tous les films minces étudiés durant cette thèse sont soit amorphes (CoFeB), soit polycristallins non texturés (Ni₆₀Fe₄₀ et Ni₈₀Fe₂₀). Dans ces conditions, aucune anisotropie magnétocristalline n'est attendue sur le plan macroscopique. Gueye *et al.* [4] ont montré que cette anisotropie uniaxiale est due à la légère courbure de l'ensemble film/substrat. On voit d'ailleurs que cette anisotropie est d'autant plus faible que le coefficient de magnétostriction est faible (nous donnons ces valeurs dans la section suivante). Par la suite, nous analysons les mesures de résonance en utilisant un champ d'anisotropie uniaxial *ad hoc* (H_u) caractérisée par la constante K_u telle que $H_u = 2K_u/M_s$ ⁵.

⁵ Il est important de noter que ce champ d'anisotropie n'est pas un vrai vecteur. Néanmoins, dans la communauté de la résonance magnétique, il est d'usage d'introduire ce genre de champ de vecteur.

Echantillon	CoFeB	Ni ₆₀ Fe ₄₀	Ni ₈₀ Fe ₂₀
H_u (Oe)	85	63	7
M_s (emu.cm ⁻³)	1080	955	720
$\gamma \cdot 10^7 / 2\pi$ (GHz.Oe ⁻¹)	0,3	0,295	0,295

Tableau 5.1 : Valeurs du champ d'anisotropie H_u , de l'aimantation à saturation M_s et du rapport gyromagnétique pour les films minces de 20 nm.

La détermination quantitative de M_s , γ et H_u passe par l'analyse de la dépendance angulaire du champ de résonance mais également par sa dépendance fréquentielle le long des axes faciles et difficiles qui correspondent aux minimum et maximum de H_{res} sur la figure 5.1-a). Ces dépendances fréquentielles du mode uniforme sont présentées sur la figure 5.1-b) pour les mêmes films minces pour un champ magnétique appliqué dans la direction facile (0° de la figure 5.1). Ainsi, la détermination des paramètres susmentionnés passe par l'ajustement de nos courbes expérimentales à l'aide d'un modèle théorique. Les expressions théoriques de la dépendance angulaire du champ de résonance et de la dépendance fréquentielle sont obtenues en utilisant la formulation de Smith et Beljers [5] (voir chapitre 3). La dépendance en fréquence du mode uniforme est donnée par [4,6] :

$$f = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H \cos(\varphi_M - \varphi_H) + H_u \cos 2\varphi_M)(H \cos(\varphi_M - \varphi_H) + H_u \cos \varphi_M^2 + 4\pi M_s)}$$

Où φ_H est l'angle planaire que fait le champ magnétique avec un côté de l'échantillon. La dépendance angulaire de H_{res} est obtenue en remplaçant H par H_{res} dans la relation ci-dessus. Une expression explicite n'est possible qu'en considérant⁶ que $\varphi_M \sim \varphi_H$, ce qui signifie que est l'aimantation alignée le long du champ magnétique appliquée, donc :

$$H_{res} = \sqrt{(2\pi M_s + H_u \sin \varphi_M^2)^2 + \left(\frac{2\pi f}{\gamma}\right)^2} - 2\pi M_s - H_u \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{2} \cos 2\varphi_M\right)$$

Les courbes en trait continu dans les figures 5.1-a) et 5.1-b) correspondent aux ajustements obtenus en utilisant les paramètres du tableau 5.1. Il est à noter que ces valeurs sont assez proches des valeurs de ces alliages à l'état massif.

Enfin, nous avons conduit des mesures similaires sur l'ensemble des films minces que nous avons élaborés (10, 50 et 100 nm). La figure 5.3 présente un exemple de dépendances angulaires obtenues sur des films minces de CoFeB de différentes épaisseurs (10, 20 et 50 nm). Les faibles variations de la valeur moyenne de ce champ de résonance sont attribuées à une variation possible de l'aimantation à saturation [2]. Les variations de la valeur du champ d'anisotropie uniaxial sont quant à elles attribuées à une courbure différente de l'ensemble film/substrat qui dépend fortement de la manipulation subséquente des échantillons [4]. Les variations du champ d'anisotropie H_u et de l'aimantation à saturation M_s sont présentées sur la figure 5.3. Les lignes horizontales correspondent à la valeur moyenne de H_u et M_s , respectivement.

⁶ Tous les ajustements présentés dans ce manuscrit ont été calculé sans faire l'hypothèse $\varphi_M \sim \varphi_H$.

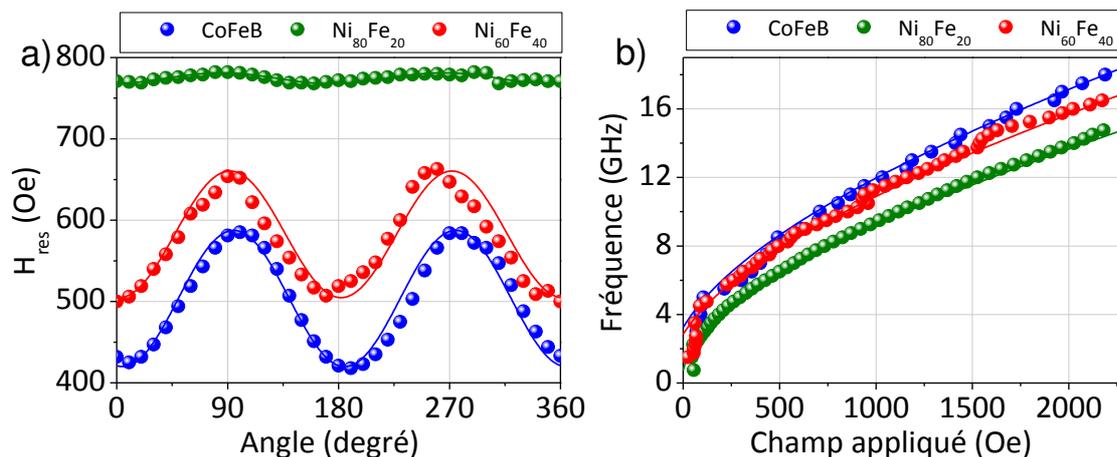


Figure 5.1 : a) Dépendance angulaire du champ de résonance de films minces (épaisseur de 20 nm) de CoFeB, $Ni_{80}Fe_{20}$ et $Ni_{60}Fe_{40}$. b) Dépendances fréquentielles du mode uniforme le long de l'axe facile pour les films minces (20 nm) de CoFeB, $Ni_{80}Fe_{20}$ et $Ni_{60}Fe_{40}$. Les données expérimentales sont représentées par des sphères, les courbes en ligne continue correspondent aux ajustements obtenus à l'aide des expressions présentées dans le texte et des valeurs présentées dans le tableau 5.1.

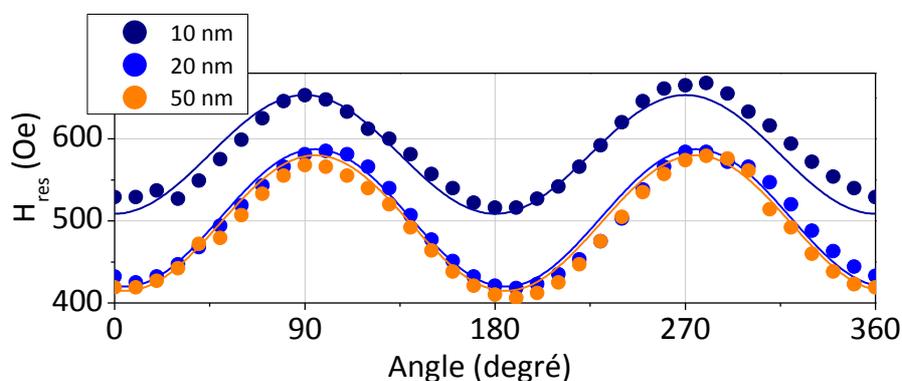


Figure 5.2 : Dépendance angulaire du champ de résonance de films minces de CoFeB de différentes épaisseurs. Les données expérimentales sont représentées par des ronds, les courbes en ligne continue correspondent aux ajustements obtenus à l'aide des expressions présentées dans le texte.

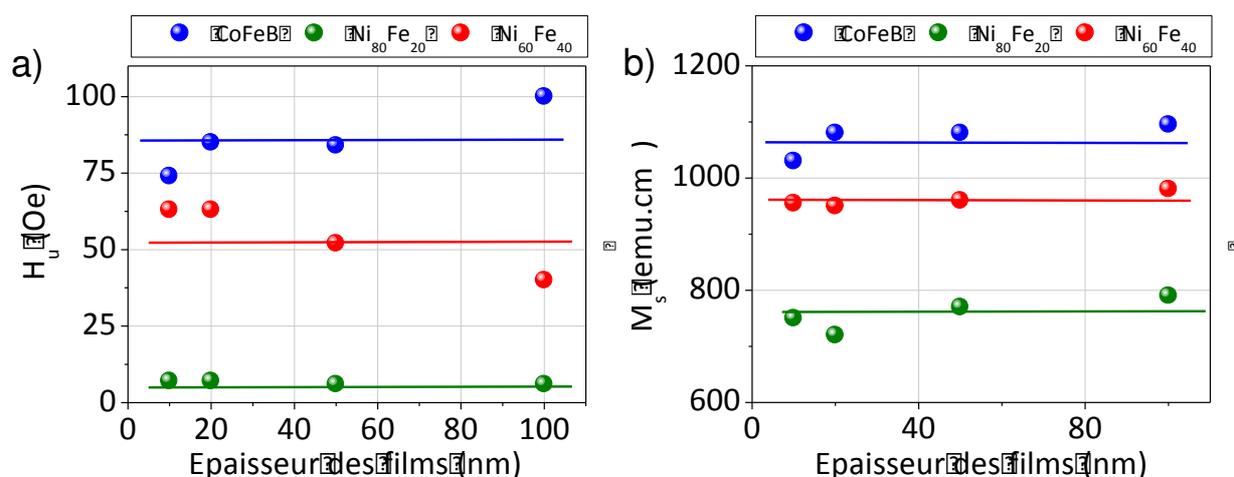


Figure 5.3 : Variation du champ d'anisotropie uniaxial H_u (a) et de l'aimantation à saturation M_s (b) en fonction de l'épaisseur des films minces pour les trois matériaux. Les traits continus correspondent aux valeurs moyennes de H_u et M_s .

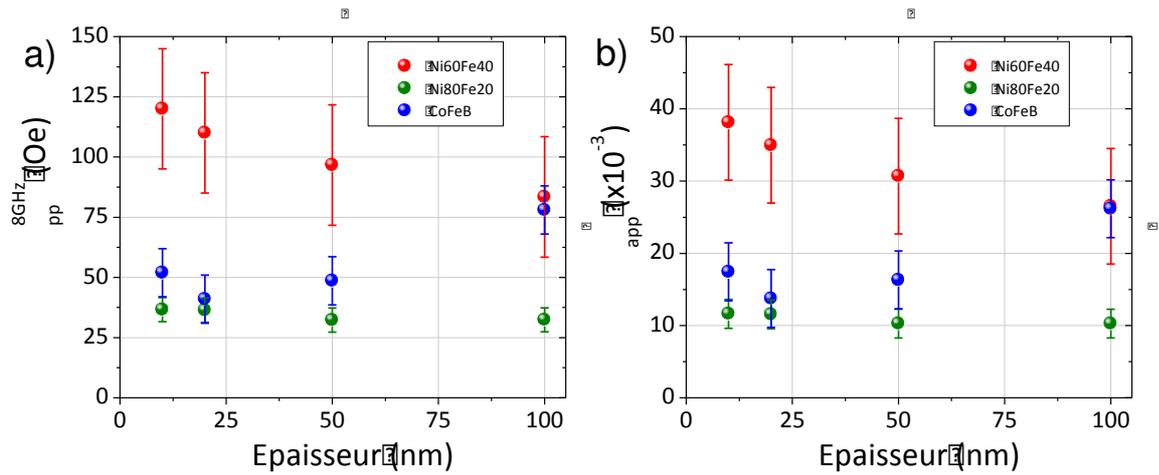


Figure 5.4 : Evolution de la largeur de raie ($\Delta H_{pp}^{8GHz} - a$) et du coefficient de Gilbert apparent ($\alpha_{app} - b$) en fonction de l'épaisseur des films minces des trois matériaux différents.

Finalement, il est également possible de représenter l'évolution de la largeur de raie (pic à pic, ΔH^{pp}) du mode uniforme des différents films. Ces évolutions donnent accès aux valeurs des amortissements de Gilbert [2]. L'amortissement de Gilbert est caractérisé par un coefficient adimensionnel α [7] (voir chapitre 3) qui d'un point de vue technologique est très important car il limite par exemple le retournement des moments magnétiques et *in fine* la vitesse d'écriture des disques durs magnétiques [8]. La figure 5.4-a) présente l'évolution de la largeur de raie moyenne en fonction de l'épaisseur pour les trois matériaux étudiés. Ces largeurs de raies moyennes ont été extraites à partir des spectres obtenus en fixant la fréquence d'excitation à 8 GHz (ΔH_{pp}^{8GHz}). La relation entre ces largeurs et le coefficient de Gilbert est donnée par [9-10] : $\Delta H^{pp} = \Delta H^0 + \frac{2\alpha}{\sqrt{3}} \frac{2\pi f}{\gamma}$. Cette relation n'est valable que lorsque l'aimantation est alignée le long du champ appliqué (ce qui est le cas à peu près le cas pour nos expériences). Dans cette relation, ΔH^0 correspond aux contributions dites extrinsèques [2, 11-12] (comme les variations spatiales de l'aimantation, de l'anisotropie, de l'échange ou encore du diffusion à deux magnons) qui peuvent également dépendre de la fréquence [13]⁷. En réalisant des mesures de résonance ferromagnétique sous différentes géométries, il est possible de discriminer les différentes contributions extrinsèques. Cela n'est pas le but de la présente thèse [12]. Ainsi, par soucis de brièveté, nous définissons à partir de maintenant un coefficient de Gilbert apparent α_{app} . Nous avons donc calculé ces coefficients α_{app} pour chacun des films et avons représenté leurs évolutions en fonction de l'épaisseur des films sondés (voir figure 5.4-b)). On remarque que ces coefficients sont à peu près constants en fonction de l'épaisseur. Leurs légères évolutions en fonction de l'épaisseur sont dues aux légères variations de l'anisotropie uniaxiale et de l'aimantation à saturation (voir figures 5.3-a et 5.3-b)). Le matériau qui possède les α_{app} les plus faibles est le $Ni_{80}Fe_{20}$ ($\sim 10 \times 10^{-3}$), cela est connu et c'est en partie ce qui a fait le succès de ce matériau dans différentes applications [14-16]. Pour le $CoFeB$, on trouve $\alpha_{app} \sim 15 \times 10^{-3}$ et d'environ 35×10^{-3} pour le $Ni_{60}Fe_{40}$. Nous verrons par la suite que ces coefficients sont fortement influencés par l'application de grandes déformations.

⁷ Nous avons vérifié que les différents films étudiés durant cette thèse ne possédaient pas de contributions extrinsèques dépendantes de la fréquence.

2. Coefficient de magnétostriction

La détermination du coefficient de magnétostriction est également un paramètre important si l'on veut analyser, même de manière qualitative, les résultats obtenus dans le cadre des grandes déformations. La détermination du coefficient de magnétostriction a été réalisée en suivant la méthodologie développée durant la thèse de Mouhamadou Gueye⁸ [17] en faisant l'hypothèse d'isotropie élastique et magnétoélastique. Pour cela, nous avons collé l'ensemble film/substrat sur un actionneur piézo-électrique. L'idée est d'enregistrer des spectres de résonance à différents états de déformations en imposant une tension à l'actionneur piézoélectrique. La transmission des déformations planaires de l'actionneur au film mince est mesurée par corrélation d'images numériques (elle est de 100%) [18]. Les figures 5.5-a) et 5.5-b) présentent la correspondance entre déformations planaires et tension appliquée. Les différents états de contraintes ont été obtenus en appliquant une tension de 0 V à 100 V par pas de 10 V⁹ [19].

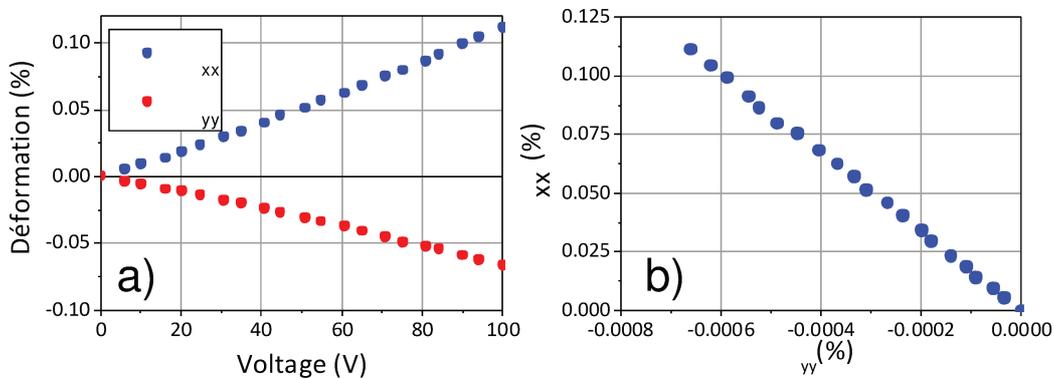


Figure 5.5 : a) : Déformations planaires moyennes (ϵ_{xx} et ϵ_{yy}) mesurées à la surface d'un film mince de 20 nm d'épaisseur déposé sur Kapton® déterminées à partir d'images numériques (corrélation d'images numériques). La tension a été appliquée de 0 V à 100 V par pas de 10 V. Les cercles bleus correspondent à ϵ_{xx} et les cercles rouges correspondent à ϵ_{yy} . Les valeurs de ϵ_{xx} sont positives alors que les valeurs de ϵ_{yy} sont négatives. b) ϵ_{xx} en fonction ϵ_{yy} , on obtient une droite avec $\epsilon_{xx} \approx -2\epsilon_{yy}$.

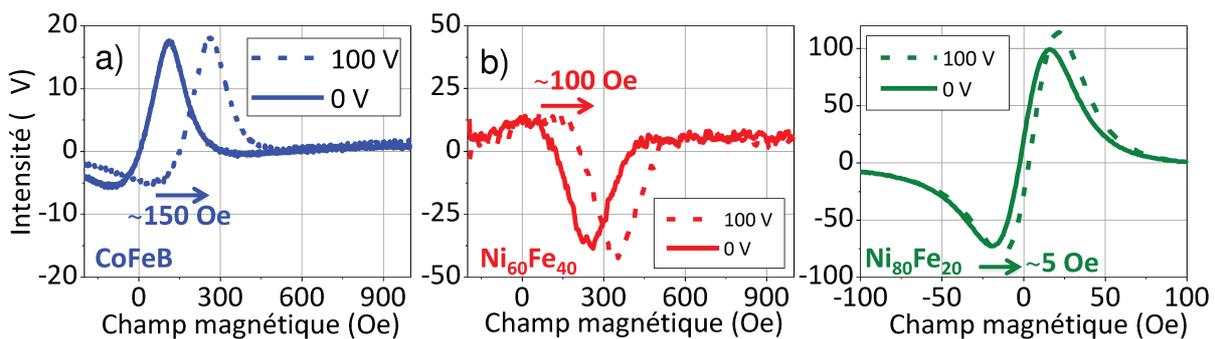


Figure 5.6 : Spectres de résonance ferromagnétique typiques de films minces de 20 nm d'épaisseur sur substrat polymère et collés sur un actionneur piézoélectrique mettant en évidence un décalage en énergie lorsqu'une tension est appliquée à l'actionneur piézoélectrique. Ce décalage est plus ou moins important suivant le matériau.

⁸ Cette thèse s'est déroulée au sein de l'équipe FINANO.

⁹ Nous n'avons pas fait de mesure durant la descente 100 V à 0 V comme dans la thèse de M. Gueye car cela n'est pas nécessaire si l'on s'intéresse uniquement à la détermination du coefficient de magnétostriction.

La figure 5.6 présente des spectres de résonance typique des films minces de 20 nm des trois matériaux utilisés durant cette thèse (CoFeB, Ni₆₀Fe₄₀ et Ni₈₀Fe₂₀) en absence de tension (0 V) et en présence d'une tension appliquée (100 V) obtenus dans les mêmes conditions : fréquence de 8 GHz et champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'actionneur. On note clairement un décalage en énergie des spectres lorsqu'une tension électrique est appliquée. Ce décalage est plus ou moins important selon les matériaux, on observe un décalage d'environ 150 Oe pour le CoFeB, 100 Oe pour le Ni₆₀Fe₄₀ et 5 Oe pour le Ni₈₀Fe₂₀. Nous allons voir que la faible valeur pour le Ni₈₀Fe₂₀ est due à son coefficient de magnétostriction quasi-négligeable. On définit alors ce décalage du champ de résonance ($\delta H_{res}(V)$) comme : $\delta H_{res}(V) = H_{res}(0) - H_{res}(V)$. Ce décalage est négatif pour l'ensemble des films minces étudiés et constitue déjà un premier résultat. En effet, on peut déduire de cela que le coefficient de magnétostriction λ est positif. En effet, l'énergie magnétoélastique pour un film mince soumis à une contrainte que l'on va supposer ici uniaxiale s'écrit: $E_{me} = -\frac{3}{2}\lambda\left(\alpha_x^2 - \frac{1}{3}\right)\sigma_{xx}$ où α_x est le cosinus directeur de l'aimantation [20]. Ainsi, un champ magnétoélastique $\vec{H}_{me} = -\vec{\nabla}_{\vec{M}} F_{me}$ peut être introduit. Pour des valeurs λ et σ_{xx} positives, ce champ est aligné le long de l'axe x . Cela induit une direction de facile aimantation le long de x . Cela induit *in fine* la diminution de H_{res} lorsque le champ est appliqué le long de x ($\varphi_H = 0^\circ$) et une augmentation H_{res} lorsque le champ est appliqué le long de y ($\varphi_H = 90^\circ$) comme on l'observe expérimentalement.

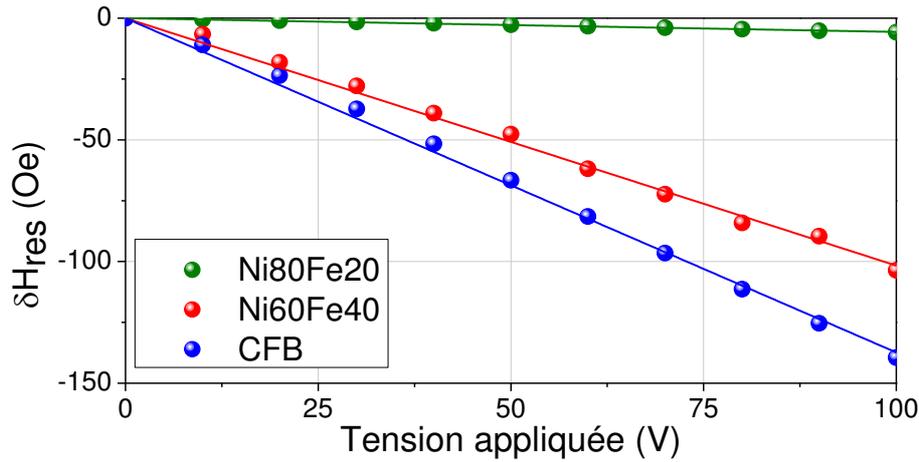


Figure 5.7 : Décalage du champ de résonance δH_{res} en fonction de la tension appliquée pour les films minces (20 nm) de CoFeB, Ni₆₀Fe₄₀ et Ni₈₀Fe₂₀. Les traits continus correspondent aux ajustements obtenus à l'aide des équations présentés dans le texte et en utilisant les valeurs présentées dans les tableaux 5.1 et 5.2.

La détermination quantitative de λ est possible en ajustant l'évolution de δH_{res} en fonction de la tension appliquée. Cette évolution est présentée en figure 5.7 pour trois films minces de 20 nm d'épaisseur et de compositions différentes. L'ajustement de ces courbes (traits continus) a été possible en introduisant la forme complète de l'énergie dans la formulation de Smith et Beljers ($F_{me} = \frac{3}{2}\lambda\left(\left(\alpha_x^2 - \frac{1}{3}\right)\sigma_{xx}(V) + \left(\alpha_y^2 - \frac{1}{3}\right)\sigma_{yy}(V)\right)$) et en utilisant la loi de Hooke isotrope pour relier les composantes du tenseur des contraintes ($\sigma_{xx}(V), \sigma_{yy}(V)$) aux composantes de celui des déformations ($\varepsilon_{xx}(V), \varepsilon_{yy}(V)$). Les valeurs des modules de Young et des coefficients de Poisson utilisés sont données dans le tableau 5.2. Dans ces conditions, le champ de résonance est donné par l'expression :

$$H_{res}(\varphi_M \approx \varphi_H) = \sqrt{(2\pi M_s)^2 + \left(\frac{2\pi f}{\gamma}\right)^2} + H_1 H_2 - 2\pi M_s - \frac{3\lambda}{M_s}(\sigma_{xx} - \sigma_{yy})$$

Où $H_1 = \frac{3\lambda}{M_s}(\sigma_{xx} \sin^2 \varphi_M - \sigma_{yy} \cos^2 \varphi_M)$ et $H_2 = 4\pi M_s + \frac{3\lambda}{M_s}(\sigma_{xx} \sin^2 \varphi_M - \sigma_{yy} \cos^2 \varphi_M)$

Dans cette expression, le seul paramètre inconnu est le coefficient de magnétostriction λ que l'on peut déterminer en ajustant les données expérimentales à ce modèle. Les valeurs trouvées pour les différents matériaux sont présentées dans le tableau 5.2. Nous n'avons pas réalisé de mesures pour l'ensemble des épaisseurs. En effet, Gueye *et al.* [21] ont montré que ce coefficient n'évoluait pas pour cette gamme d'épaisseur (10-100 nm). On peut noter la bonne qualité des films minces de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ pour lesquels on trouve une magnétostriction quasi-nulle (0,75 ppm). Par ailleurs, nous avons vérifié sur quelques autres échantillons que ces coefficients de magnétostriction n'évoluait presque pas pour cette gamme d'épaisseur. Cela rejoint les conclusions de Gueye *et al.* [21] qui ont montré que le coefficient de magnétostriction de films minces de CoFeB de différentes épaisseurs (10, 20 et 250 nm) était constant.

Echantillon	CoFeB	$\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$	$\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$
E_f (GPa)	160	205	180
ν_f	0,3	0,33	0,31
λ ($\times 10^{-6}$)	23	12	0,75

Tableau 5.2: Valeurs des modules de Young E_f , des coefficients de Poisson ν_f et des coefficients de magnétostriction λ pour les trois types de films minces. Les paramètres des modules de Young et des coefficients de Poisson sont issus des références [21-24]

3. Comportement magnétique en grandes déformations

Nous allons à présent analyser l'influence de grandes déformations sur les propriétés magnétiques de nos films minces. Il est important de noter que les mesures de résonance magnétique n'ont pas été réalisées de manière *ex situ*. Cela est dû à l'encombrement géométrique, il est en effet impossible d'incorporer la machine de traction au sein de l'entrefer de l'électroaimant disponible au laboratoire. Toutefois, étant donné que nous sondons des phénomènes irréversibles, nous avons analysé des échantillons *ex situ* déformés au préalable à plusieurs niveaux de déformation. Nous avons ainsi réalisé plusieurs éprouvettes de même taille et avons minimisé le temps entre la déformation appliquée et les mesures de résonance (quelques minutes) pour minimiser les phénomènes de fermeture des fissures post essais. Les mesures de résonance réalisées sont essentiellement des mesures de dépendances angulaires du champ de résonance afin de suivre l'évolution des anisotropies magnétiques planaires, on sait en effet que $2H_u \approx H_{res}^{max} - H_{res}^{min}$ [25]. La fréquence d'excitation est fixée à 8 GHz tout au long de cette section. Nous commençons par les films minces de CoFeB qui présentent les fissures les plus droites au vu de nos observations montrées au chapitre 4. La figure 5.8 montre un schéma représentant une éprouvette et l'angle que fait le champ magnétique avec l'axe de traction caractérisé par un angle φ_H .

Nous avons représenté des spectres de résonance ferromagnétique de films minces de CoFeB de 20 nm d'épaisseur typiques sur la figure 5.9. Ces spectres ont été obtenus en appliquant un champ magnétique transversalement à la traction préalablement appliquée. Il est remarquable de noter que même après l'application de grandes déformations (jusqu'à 20%), le signal est à peine dégradé. En effet, bien que les spectres aient été normalisés, on se rend compte d'une très légère diminution du rapport signal sur bruit au delà de 8-9% de déformations (les spectres ont tous été enregistrés dans les mêmes conditions). Cette qualité préservée des spectres est en soit un premier résultat. Par ailleurs, on se rend compte que le champ de résonance évolue fortement d'un spectre à l'autre. Cela est dû à la variation de l'anisotropie planaire des films.

Ainsi, la figure 5.10 présente ainsi les dépendances angulaires du champ de résonance pour différentes déformations appliquées à un film mince de CoFeB de 20 nm d'épaisseur. Dans ces dépendances angulaires, la traction est appliquée à $\varphi_H = 90^\circ$ (axe y de la figure 5.8). En l'absence de déformation (0%), l'axe de facile aimantation (direction pour laquelle H_{res} est minimum) se trouve à $\varphi_H = 0^\circ$ (axe x de la figure 5.8). A partir de 3% de déformation, on note que la valeur globale de l'anisotropie ($H_u \approx 90$ Oe) ne varie pas mais que son axe varie légèrement de quelques degrés. Puis, au delà de 6% de déformations, l'axe de facile aimantation se retrouve le long de la traction appliquée. Nous avons utilisé un code couleur rouge/bleue afin d'illustrer ce basculement de direction de l'axe de facile aimantation. A partir de 11% de déformation, l'axe de facile aimantation repasse à $\varphi_H = 0^\circ$. Par ailleurs, en plus du basculement de cet axe de facile aimantation de 0° à 90° puis de nouveau à 0° , on note que la valeur du champ d'anisotropie varie également.

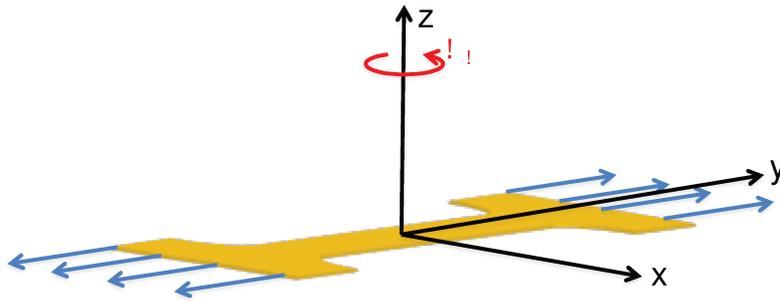


Figure 5.8 : Schéma représentant une éprouvette, son axe de traction (flèches bleues) et l'angle azimutal φ_H que fait le champ magnétique appliqué avec l'axe de traction.

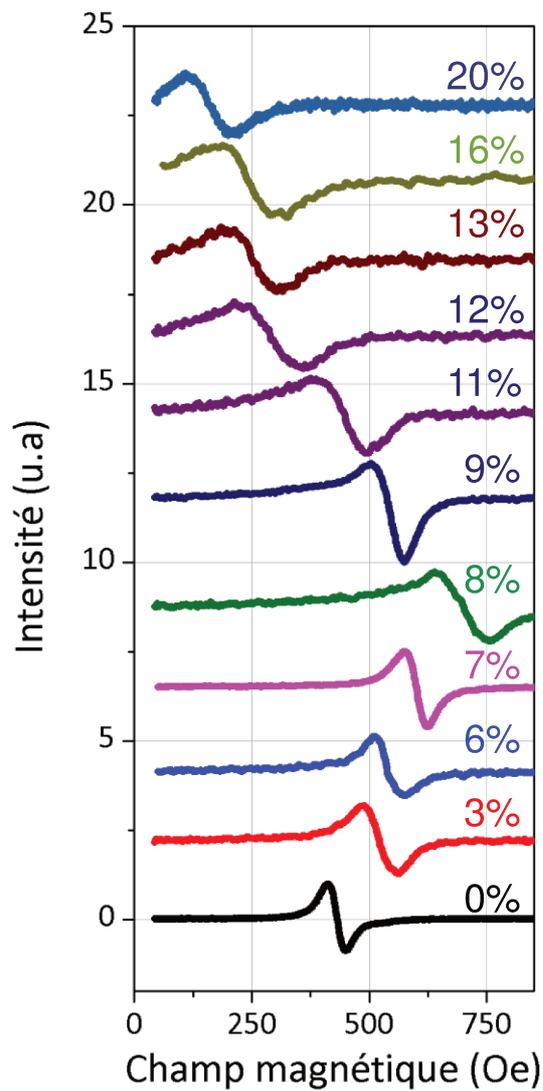


Figure 5.9 : Spectres de résonance ferromagnétique typiques de films minces de 20 nm d'épaisseur pour différentes déformations préalablement appliquées. Les spectres ont été normalisés pour plus de clarté.

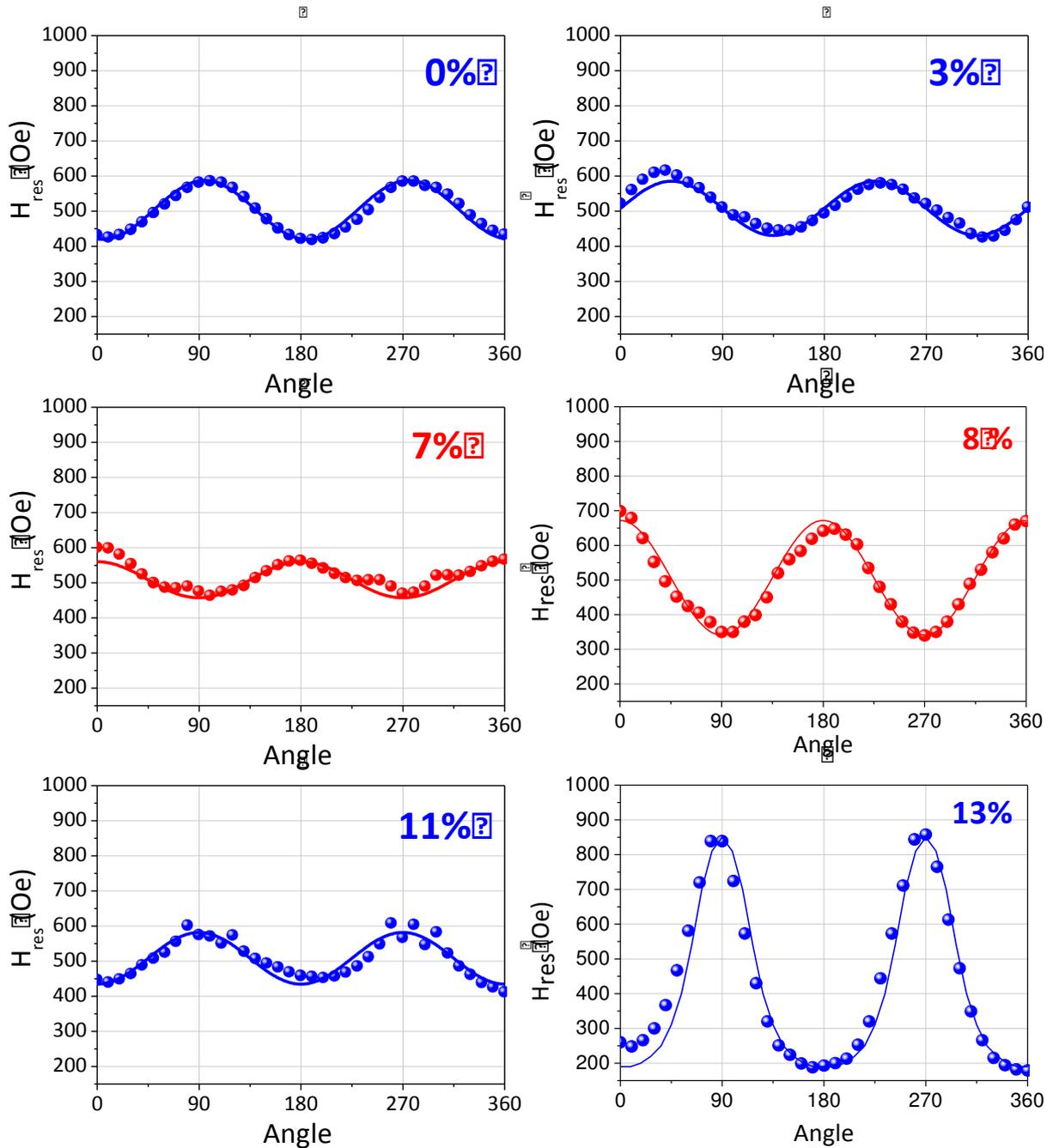


Figure 5.10 : Dépendances angulaire du champ de résonance H_{res} obtenues sur un film de CoFeB de 20 nm à différents états de déformations. Les pourcentages de déformations sont indiqués dans chaque graphe. Le code couleur bleu/rouge correspond permet de visualiser le basculement de la direction de l'axe de facile aimantation. Les traits continus correspondent aux ajustements des données expérimentales calculés

La figure 5.11 représente la variation du champ d'anisotropie uniaxiale en fonction de la déformation imposée. Nous avons utilisé la convention suivante pour le signe de ce champ H_u : il est positif lorsque l'axe de facile aimantation est le long de traction et il est négatif lorsque cet axe est à 90° de la traction. Cette courbe illustre les résultats issus des dépendances angulaires du champ de résonance. On voit clairement que H_u est initialement négatif, puis positif entre 5% et 10% de déformation puis de nouveau négatif au delà de 11% de déformation.

Afin d'expliquer ce comportement complexe de H_u avec la déformation, une première hypothèse pourrait être l'effet d'une anisotropie de forme liée au caractère parallèle des fissures entre elles. En effet, si l'on voit cet ensemble de fragments comme un réseau 1D de nanostructures (nanolignes orientées selon x), cela pourrait expliquer le revirement de H_u vers les valeurs négatives [6]. Cependant, le chapitre 4 nous montre que l'apparition des fissures a lieu à moins de 2% de déformation et la saturation de la largeur des fragments est obtenue à 6% de déformation, valeurs pour laquelle H_u est encore positif, ce qui tend à invalider cette hypothèse. De plus un calcul élémentaire de magnétostatique [6] montre qu'un champ d'anisotropie de ce type est non négligeable pour des dimensions latérales plus faibles que celles de nos fragments (plutôt une centaine de nanomètres alors que nos fragments ont une largeur d'environ 2 μm). En outre, les traits continus sur la figure 5.10 ont été obtenus en utilisant l'expression du champ de résonance obtenue en utilisant la formulation de Smith-Bejers. Il est important de noter que nous avons uniquement ajusté la valeur de H_u . Nous avons ainsi utilisé les valeurs de M_s et de γ de l'état non déformé. Nous pouvons voir que les ajustements collent assez bien aux résultats expérimentaux. Cela permet ainsi de conclure que la valeur de l'aimantation à saturation n'est pas affectée par ces grandes déformations. Dans ces conditions, nous n'avons pas de raison de penser non plus que le coefficient de magnétostriction évolue fortement ou qu'il ne change de signe.

Nous devons trouver une meilleure corrélation avec les résultats obtenus au chapitre 4. En l'occurrence, nous avons mis en évidence la présence de 3 régimes distincts pour ces films de CoFeB : (i) domaine élastique, (ii) multiplication des fissures, (iii) décollements à densité de fissures fixe. La figure 5.11 présente à quelles gammes de déformations correspondent ces régimes. Nous montrons également une image AFM ($20 \times 20 \mu\text{m}^2$) typique de chacune de ces régions.

Nous allons discuter des mesures de H_u , en nous basant sur l'état de contrainte planaire induit par chaque essai de traction. En effet, Gueye *et al.* [25] ont montré que la contribution magnétoélastique au champ d'anisotropie H_u pouvait s'écrire simplement en fonction des contraintes planaires :

$$H_u = \frac{3\lambda}{M_s} (\sigma_{yy} - \sigma_{xx})$$

Rappelons que ces mesures ont été effectuées de manière *ex situ*. Ainsi, toute contribution magnétoélastique au champ d'anisotropie H_u ne peut être due qu'à des contraintes résiduelles générées lors de l'essai de traction puis lors de la décharge élastique du substrat.

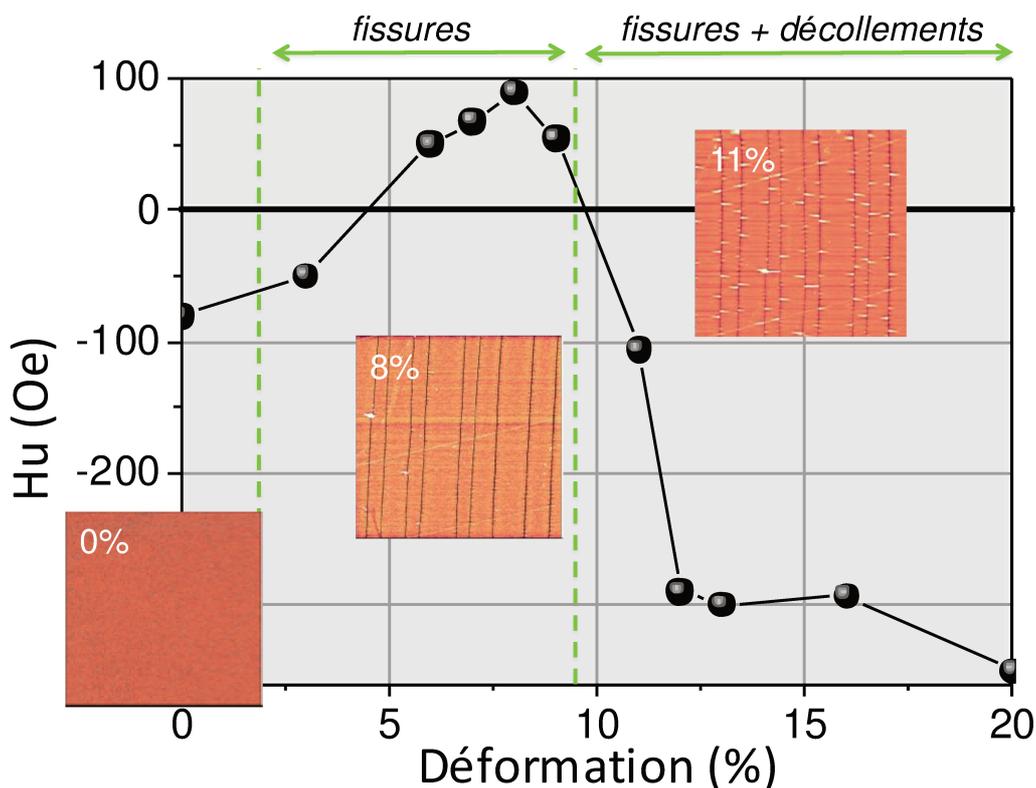


Figure 5.11: Variation du champ d'anisotropie uniaxiale H_u en fonction de la déformation imposée à un film mince de CoFeB (20 nm). Ce champ est compté positivement lorsqu'il est aligné le long de la traction et négativement lorsqu'il lui est perpendiculaire. Les images AFM ($20 \times 20 \mu\text{m}^2$) présentées sont caractéristiques des trois régimes.

Tout d'abord, on voit clairement que la multiplication des fissures est corrélée avec le premier changement de signe de H_u . En effet, il est connu dans ce régime, pour des films fragiles, qu'un plateau de contrainte longitudinale est observé tandis qu'une contrainte transverse de compression se développe et augmente tant qu'aucun décollement du film n'occure. Ce phénomène est illustré sur la figure 5.12 pour un film mince de Tantale-alpha de 50 nm d'épaisseur pour lequel les contraintes sont mesurées de manière *in situ* par la diffraction des rayons X [26]. Nous pensons que cette différence entre σ_{yy} et σ_{xx} est suffisamment importante pour qu'il subsiste une réminiscence dans l'état résiduel d'après décharge. Ceci explique le signe positif de H_u avant apparition des décollements.

Après l'apparition des premiers décollements, associée à la plasticité localisée du substrat, la contrainte transverse de compression décroît fortement tandis que la contrainte longitudinale de tension diminue et peut tendre vers zéro pour des déformations de 20% comme le montre également la figure 5.12. Alors, une décharge du substrat partant d'un tel état de contrainte dans le film peut tout à fait inverser le signe des contraintes transverse et longitudinale. Etant donné que nous n'avons identifié d'autre source de modification pour H_u qu'une contribution magnétoélastique, nous pensons qu'une telle inversion des contraintes s'est produite.

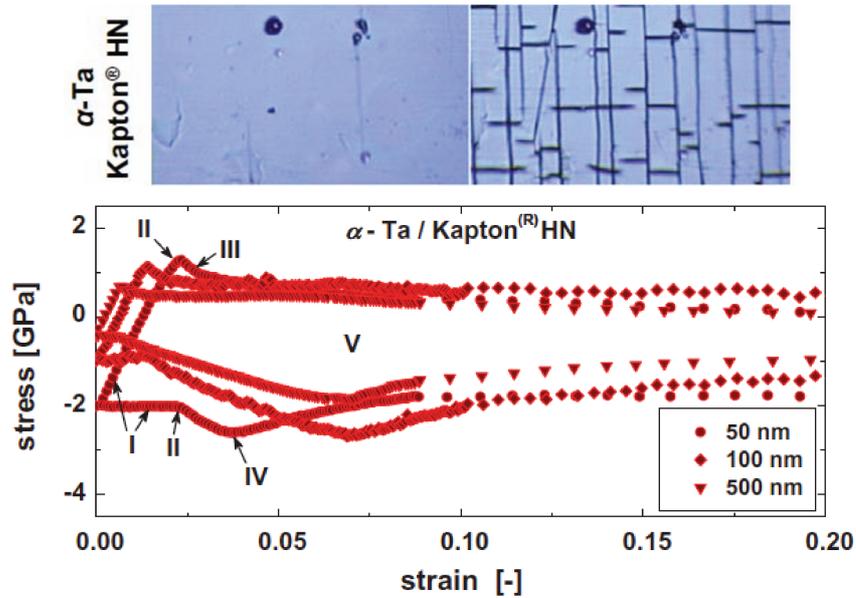


Figure 5.12: Figures issues de la référence [26]. En haut, images optiques prises à 2% à gauche et 8% à droite d'un film de Tantale-alpha de 50nm d'épaisseur déposé sur Kapton®. En bas, courbes contrainte-déformation mesurées par diffraction des rayons X in situ pour 3 épaisseurs du même type de film. Les 5 régimes décrits dans cette étude correspondent à : I-domaine élastique, II-début de la fragmentation induisant un plateau pour σ_{yy} (selon l'axe de traction) et une compression σ_{xx} transverse à l'axe de traction, III-multiplication des fissures, IV-Initiation du décollement relaxant σ_{xx} V- plasticité du substrat.

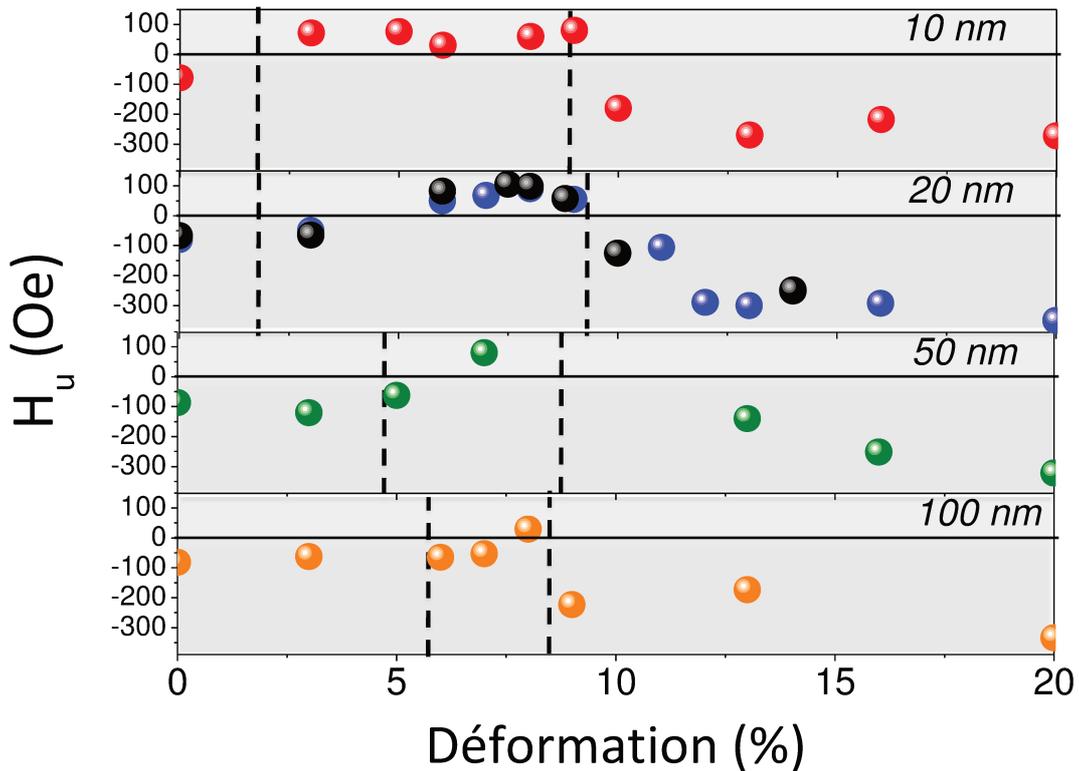


Figure 5.13: Variation du champ d'anisotropie uniaxiale H_u en fonction de la déformation imposée à des films minces de CoFeB de différentes épaisseurs : 10, 20, 50 et 100 nm. Ce champ est compté positivement lorsqu'il est aligné le long de la traction et négativement lorsqu'il lui est perpendiculaire. Les trois régimes (« absence de fissures », « fissures » et « fissures en présence de décollements ») sont délimités par le biais de traits en pointillés noirs verticaux.

Afin de confirmer nos observations sur ces films minces de CoFeB de 20 nm d'épaisseur, nous avons réalisé des essais de traction suivis de mesures de résonance magnétique sur les autres films de CoFeB (10, 50 et 100 nm) à notre disposition. Par ailleurs, nous avons également conduit des mesures sur une nouvelle série de films minces de 20 nm issu d'un nouveau dépôt par pulvérisation magnétron réalisé un an après. Les résultats issus des mesures de dépendances angulaires (à 8 GHz) sont présentés dans la figure 5.13.

Dans cette figure, les traits verticaux noirs pointillés délimitent les trois régimes que nous avons identifié grâce aux observations AFM *in situ* parfois combinées aux mesures de résistivité *in situ* présentées dans le chapitre 4. Il est tout de suite intéressant de noter que le régime « fissures en présence de décollements » démarre à peu près pour la même déformation (~9%) alors que l'initiation des fissures est très dépendante de l'épaisseur du film sondé. Cette initiation démarre ainsi à ~2% pour les films de 10 et 20 nm, à ~4% pour les films de 50 nm et ~6% pour les films de 100 nm. En outre, les résultats obtenus avec la nouvelle série de films minces de 20 nm sont très similaires à ceux précédemment obtenus. On a en effet à quelques Oe près les mêmes valeurs de H_u avec un changement de signe qui a lieu pour les mêmes valeurs de déformations. Cette similitude de comportement sur deux séries d'échantillons élaborés à un an d'intervalle démontre le caractère robuste et répétable de nos expériences. Concernant maintenant le premier changement de signe de H_u ; on remarque qu'il est dépendant de l'épaisseur des films sondés. En effet, plus l'épaisseur est grande, plus cette inversion a lieu à grande déformation ; elle a lieu à ~3-4% pour 10 nm ; à ~5-6% pour 20 nm ; à ~6-7% pour 50 nm et à ~7-8% pour 100 nm. Cette inversion est fortement corrélée à l'apparition des premières fissures qui est également très dépendante de l'épaisseur comme nous l'avons vu au chapitre 4. Il existe une inertie entre l'apparition des fissures et la première inversion de signe pour chaque épaisseur, ce qui n'est pas étonnant puisqu'il faut sans doute atteindre une densité de fissures suffisante pour générer l'état de contraintes résiduelles nécessaire.

A l'inverse, il est intéressant de noter que le second changement de signe a lieu à peu près pour la même déformation quelque soit l'épaisseur des films minces ce qui est encore une fois bien corrélé à la délimitation entre les régimes « fissures » et « fissures en présence de décollements ». Enfin, concernant la valeur de H_u , on remarque que les valeurs minimales et maximales de H_u sont à peu près les mêmes (indépendamment des déformations auxquelles ont lieu les inversions de signe) quelque soit l'épaisseur et donc la largeur des fragments. De plus ces valeurs de l'ordre de 300-400 Oe sont bien supérieures à celles attendues pour de l'éventuelle anisotropie de forme, excluant définitivement cette dernière hypothèse.

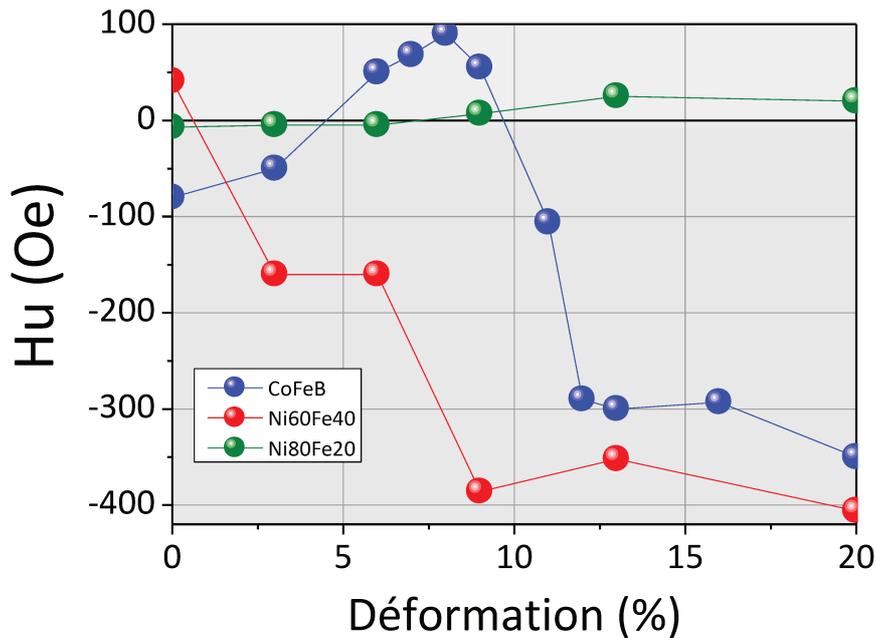


Figure 5.14: Variation du champ d'anisotropie uniaxiale H_u en fonction de la déformation imposée aux trois types de films minces (20 nm). Ce champ est compté positivement lorsqu'il est aligné le long de la traction et négativement lorsqu'il lui est perpendiculaire.

Nous avons mené les mêmes expériences avec les films minces des alliages NiFe. La figure 5.14 présente les variations du champ d'anisotropie H_u pour les trois matériaux à épaisseur donnée (20 nm). Notons ici que ces valeurs de H_u sont issues d'ajustements des dépendances angulaires du champ de résonance. Comme pour le CoFeB, les valeurs de M_s et de γ ne semblent pas être affectés par ces grandes déformations. On remarque immédiatement que H_u varie relativement peu pour les films minces de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$. Nous attribuons cette monotonie de H_u avec la déformation appliquée au coefficient de magnétostriction quasi-nul pour cet alliage, confirmant ainsi que ces résultats doivent être analysés dans le cadre des contraintes résiduelles et que les contributions autres que magnétoélastique peuvent être négligées. Concernant l'alliage $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$, le comportement est un peu différent du CoFeB. Si l'on observe la même variation significative de H_u avec la déformation appliquée à partir de 8% de déformation, liée à l'apparition de décollements localisés des films, la région « fissures » présente un H_u déjà négatif ce qui doit être lié à la morphologie totalement différente des fissures (sinueuses pour le $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$). Enfin, la figure 5.14 présente une synthèse des variations de H_u pour chaque épaisseur de chaque matériau. On voit que la tendance est assez similaire pour chaque épaisseur.

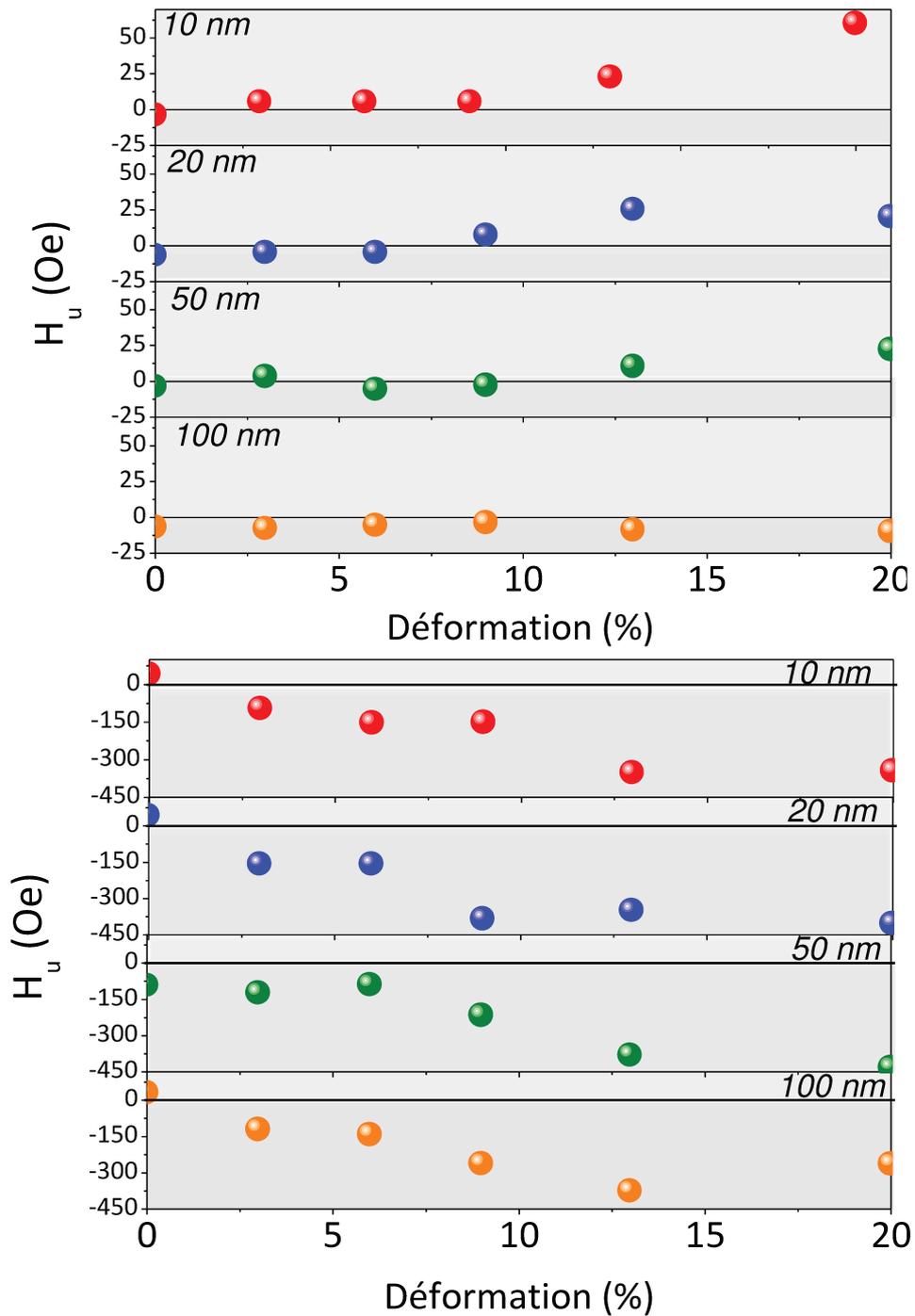


Figure 5.15: Variation du champ d'anisotropie uniaxiale H_u en fonction de la déformation imposée à des films minces de $Ni_{80}Fe_{20}$ (haut) et $Ni_{60}Fe_{40}$ (bas) de différentes épaisseurs : 10, 20, 50 et 100 nm. Ce champ est compté positivement lorsqu'il est aligné le long de la traction et négativement lorsqu'il lui est perpendiculaire.

Finalement, nous avons représenté les évolutions des coefficients d'amortissement apparents (α_{app}) des films minces de chacun des matériaux étudiés. Afin de ne voir que l'effet des grandes déformations, nous avons soustrait les valeurs en l'absence de déformation (celles de la figure 5.4-b)), il s'agit donc d'évolutions relatives avec la déformation appliquée. Ainsi, les figures 5.16-a), 5.16-b) et 5.16-c) présentent l'évolution de α_{app} en fonction de la déformation préalablement appliquée pour chacun des matériaux. La figure 5.16-d) permet de comparer l'évolution des α_{app} pour les trois matériaux étudiés (films minces de 20 nm d'épaisseur). Ce coefficient est la signature des hétérogénéités présentes au sein du film mince. Ainsi il va dépendre de l'hétérogénéité de déformation et sera exacerbé par la déformation moyenne. En terme de magnétisme, il s'agit de l'hétérogénéité de H_u exacerbée par sa valeur moyenne.

On note que ce coefficient présente une dépendance globalement croissante pour l'ensemble des matériaux. Les droites en traits pointillés sont là pour marquer cette tendance. Pour les films minces de $Ni_{60}Fe_{40}$ et $CoFeB$, on remarque que plus l'épaisseur est grande et moins la pente de ces droites est importante. Ceci est cohérent avec les résultats précédents de cette thèse ; en effet, les films les plus minces présentent des densités de fissures et de décohésions les plus importantes. Celles-ci sont sources de grandes hétérogénéités. Rappelons que l'évolution de la valeur moyenne de H_u avec la déformation était assez faiblement dépendante de l'épaisseur, il s'agit donc bien d'un effet pur d'hétérogénéité. En effet, si ces augmentations n'étaient dues qu'à une augmentation (en valeur absolue) du champ d'anisotropie moyen, les valeurs finales de α_{app} seraient toutes les mêmes à 20% de déformation, ce qui n'est pas le cas. En supplément, dans ces évolutions, on note l'influence de la contribution de la valeur moyenne de H_u . En effet, si l'on regarde de près à la courbe du $CoFeB$, on peut voir la signature de la région « fissures » que l'on observait pour H_u (amollissement de α_{app} entre 2% et 7% que l'on voit particulièrement bien pour les épaisseurs 10 nm et 20 nm).

Pour les films de $Ni_{80}Fe_{20}$, on remarque que les grandes déformations n'ont que peu d'influences sur les valeurs de α_{app} . Cela est assez remarquable lorsque l'on met ces résultats en relation aux multiples fissurations et décohésions présentes au sein de ces films. En effet, la faible magnétostriction rend ce matériau peu sensible d'un point de vue magnétique aux hétérogénéités de déformation. Cette conclusion est mise en exergue par la figure 5.16-d) où l'on voit clairement le faible effet de ces grandes déformations sur le coefficient α_{app} par rapport aux autres matériaux.

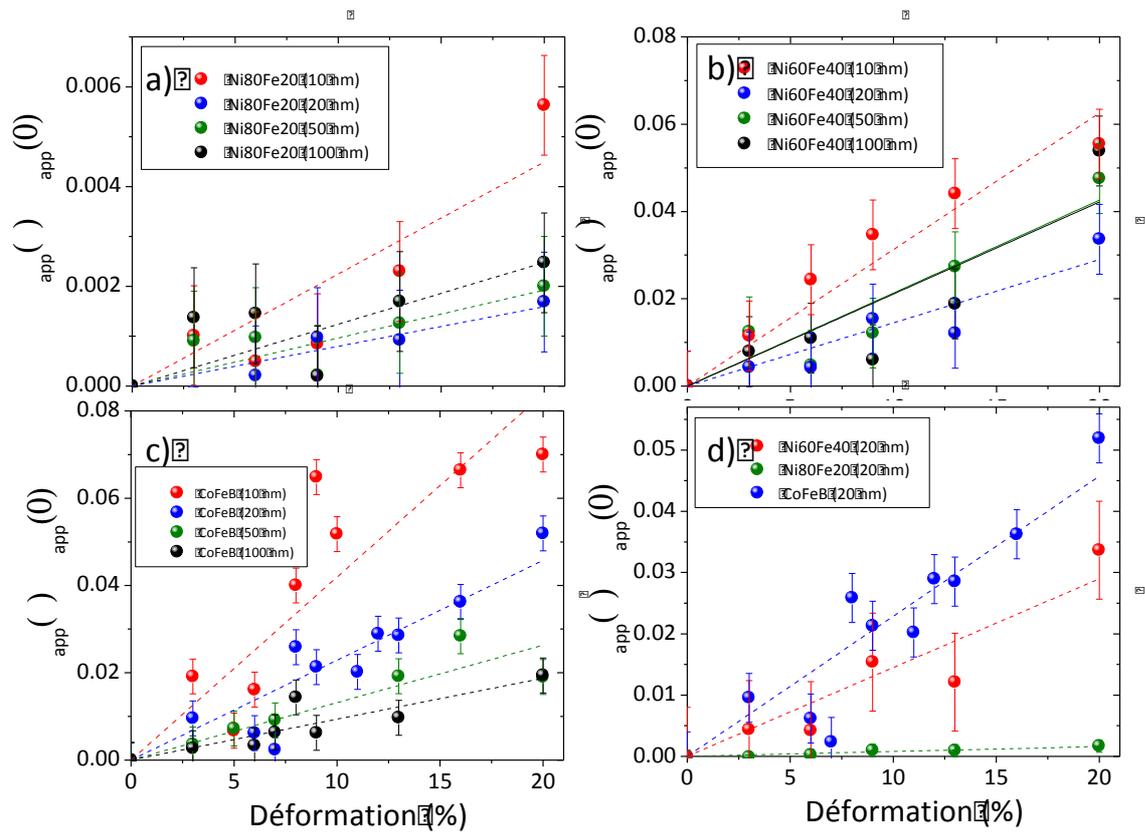


Figure 5.16: Evolution des coefficients de Gilbert apparents en fonction de la déformation préalablement appliquée de l'ensemble des films minces étudiés durant cette thèse. Les graphes a), b) et c) correspondent aux évolutions pour les films minces de $Ni_{80}Fe_{20}$, $Ni_{60}Fe_{40}$ et $CoFeB$, respectivement. Le graphe d) permet de comparer l'évolution de ce coefficient pour les trois matériaux étudiés (films minces de 20 nm d'épaisseur).

Principaux résultats en bref

- (i) Les propriétés magnétiques de bases et le coefficient de magnétostriction du CoFeB, Ni₆₀Fe₄₀ et Ni₈₀Fe₂₀ (permalloy) ont été mesurés par résonance ferromagnétique.
- (ii) Les effets mesurés *ex situ* des grandes déformations sur l'anisotropie magnétique ont permis d'identifier les liens avec les régimes « fissures » et « fissures + décollements » trouvés au chapitre 4.
- (iii) Le coefficient d'amortissement de Gilbert dépend de la déformation macroscopique appliquée, source elle-même d'hétérogénéités de déformations importantes lors de la multifissuration et de la délamination.
- (iv) Dans le cas du Ni₈₀Fe₂₀ (permalloy) dont le coefficient de magnétostriction est quasi-nul, les effets des grandes déformations sur le magnétisme sont très faibles malgré le nombre de discontinuités importantes au sein des films minces correspondant.

Bibliographie

- [1] O. Yalçın, « Ferromagnetic resonance », inTech Open, pp.9–11 (2013)
- [2] B. Heinrich and J. A. C. Bland, Eds., « Ultrathin Magnetic Structures », (Springer-Verlag, Berlin), vol. 2 (1994)
- [3] F. Zighem, D. Faurie, M. Belmeguenai, N. Girodon-Boulandet, M. S. Gabor, P. Djemia, « Annealing effect on elastic, magnetic and magnetoelastic properties of CoFeB thin films on polymer substrate », *Journal of Physics D: Applied Physics* 50, 455002 (2017)
- [4] M. Gueye, P. Lupo, F. Zighem, D. Faurie, M. Belmeguenai, A. O. Adeyeye, « Unambiguous magnetoelastic effect on residual anisotropy in thin films deposited on flexible substrates », *Europhysics Letters* 114, 17003 (2017)
- [5] J. Smith and H.G. Beljers, “Ferromagnetic resonance absorption in BaFe₁₂O₁₉, a highly anisotropic crystal”, *Philips Research Reports* 10, 113 (1955)
- [6] F. Zighem, D. Faurie, M. Belmeguenai, A. Garcia-Sanchez, P. Lupo and A. O. Adeyeye, « Large area periodic ferromagnetic nanowires deposited onto a polymer substrate », *Applied Physics Letters* 111, 052408 (2017)
- [7] T. L. Gilbert, “A Lagrangian Formulation of the Gyromagnetic Equation of the Magnetization Field”, *Physical Review* 100, 1234 (1955).
- [8] M. Ogoane, T. Wakitani, S. Yakata, R. Yilgin, Y. Ando, A. Sakuma and T. Miyazaki, « Magnetic Damping in Ferromagnetic Thin Films », *Japanese Journal of Applied Physics* 45, 3880 (2006)
- [9] H. Suhl, « Ferromagnetic resonance in nickel ferrite between one and two kilomegacycles », *Physical Review* 97, 555 (1955)
- [10] Y. V. Goryunov, N. N. Garifyanov, G. G. Khaliullin, I. A. Garifullin, L.R. Tagirov, F. Schreiber, T. Miihge, and H. Zabel, « Magnetic anisotropies of sputtered Fe films on MgO substrates », *Physical Review B* 52, 13450 (1995)
- [11] B. Heinrich, J. F. Cochran, and R. Hasegawa, « FMR linebroadening in metals due to two magnon scattering », *Journal of Applied Physics* 57, 3690 (1985)
- [12] Kh. Zakeri, J. Lindner, R. Meckenstock, M. Farle, U. von Hörsten, H. Wende, W. Keune, J. Rocker, S. S. Kalarickal, K. Lenz, W. Kuch, K. Baberschke and Z. Frait, « Spin dynamics in ferromagnets: Gilbert damping and two-magnon scattering », *Physical Review B* 76, 104416 (2007)
- [13] R. Arias and D. L. Mills, « Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films », *Physical Review B* 60, 7395 (1999)
- [14] W. Kwiatkowski and S. Tumanski, « The permalloy magnetoresistive sensors-properties and applications », *Journal of Physics E: Scientific Instruments* 19, 502 (1986)
- [15] J. Ben Youssef, N. Vukadinovic, M. Larbrune, « Thickness-dependent magnetic excitations in Permalloy films with nonuniform magnetization », *Physical Review B* 69, 174402 (2004)
- [16] T. J. Silva, C. S. Lee, T. M. Crawford and C. T. Rogers, « Inductive measurement of ultrafast magnetization dynamics in thin-film Permalloy », *Journal of Applied Physics* 89, 7849 (1999)
- [17] M. Gueye, « Magnetic thin films on flexible substrates: magnetomechanical study by ferromagnetic resonance », thèse de doctorat, Université Paris 13 (2017)
- [18] F. Zighem, A. El Bahoui, J. Moulin, D. Faurie, M. Belmeguenai, S. Mercone, H. Haddadi, « Microstrip ferromagnetic resonance study of strain-induced anisotropy in amorphous FeCuNbSiB film on flexible substrate », *Journal of Applied Physics* 116 (12), 123903 (2014)
- [19] F. Zighem, M. Belmeguenai, D. Faurie, H. Haddadi and J. Moulin, « Combining ferromagnetic resonator and digital image correlation to study the strain induced resonance tunability in magnetoelectric heterostructures », *Review of Scientific Instruments* 85 (10), 103905 (2014)
- [20] E. Du Trémolet de Lacheisserie, « Magnetostriction: Theory and Applications of Magnetoelasticity », Boca Raton, FL: CRC Press (1993)
- [21] M. Gueye, F. Zighem, M. Belmeguenai, M. S. Gabor, C. Tiusan, D. Faurie, « Spectroscopic investigation of elastic and magnetoelastic properties of CoFeB thin films », *Journal of Physics D: Applied Physics* 49, 145003 (2016)

- [22] Z. Tang, B. Wang, H. Yang, X. Xu, Y. Liu, D. Sun, L. Xia, Q. Zhan, B. Chen, M. Tang, Y. Zhou, J. Wang, R.-W. Li, « Magneto-mechanical coupling effect in amorphous Co₄₀Fe₄₀B₂₀ films grown on flexible substrates », *Applied Physics Letters*, 105, 103504 (2014)
- [23] H. Pan, V. L. Zhang, K. Di, M. H. Kuok, H. S. Lim, S. C. Ng, N. Singh and A. O. Adeyeye, « Phononic and magnonic dispersions of surface waves on a permalloy/BARC nanostructured array », *Nanoscale Reserach Letters*, 8, 115 (2013)
- [24] H. M. Ledbetter and R. P. Reed, "Elastic Properties of metals and alloys, I. Iron, Nickel, and Iron-Nickel Alloys", *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 2, 531 (1973)
- [25] M. Gueye, F. Zighem, M. Belmeguenai, M. S. Gabor, C. Tiusan, D. Faurie, « Ferromagnetic resonance in thin films submitted to multiaxial stress state: application of the uniaxial equivalent stress concept and experimental validation », *Journal of Physics D: Applied Physics* 49, 265001 (2016)
- [26] S. Frank, U.A. Handge, S. Olliges, R. Spolenak, "The relationship between thin film fragmentation and buckle formation: Synchrotron-based in situ studies and two-dimensional stress analysis", *Acta Materialia* 57, 1442 (2009).

Chapitre 6

Déformation de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ – Effet sur les propriétés magnétiques

Sommaire

1. Essai de traction *in situ*
 - 1.1 Images AFM
 - 1.2 Analyse quantitative
 2. Propriétés magnétiques et magnéto-mécaniques
 - 2.1 Propriétés magnétiques en absence de déformation
 - 2.2 Influence des grandes déformations
-

Dans ce chapitre, nous présentons l'étude des propriétés mécanique et magnétomécanique de réseaux de nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ et $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ de 20 nm d'épaisseur. Nous rappelons que ces échantillons ont été élaborés par lithographie interférentielle (voir chapitre 2) [1]. La largeur des nanolignes est égale à environ 400 nm et l'écartement entre celles-ci est de 200 nm. Pour des raisons d'encombrement géométrique, il n'a été possible d'élaborer des réseaux de nanolignes que dans la direction parallèle à la longueur de l'éprouvette. La figure 6.1 présente une photographie et une image synthétique des réseaux de nanolignes déposés sur un substrat Kapton® rectangulaire.

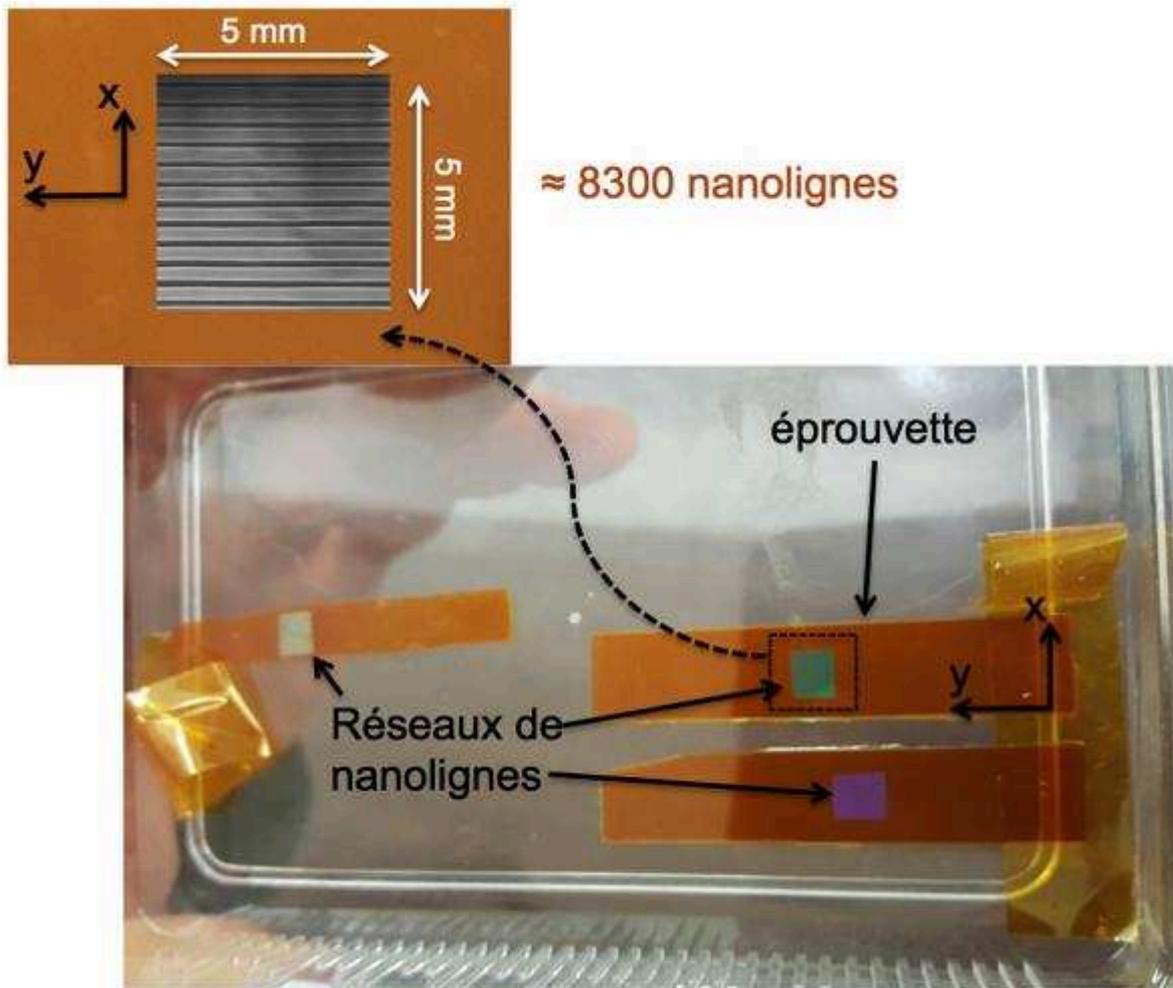


Figure 6.1 : Photographie d'échantillons de nanolignes sur éprouvettes droites de Kapton®

Les réseaux de nanolignes correspondent aux zones colorées (vert, violette et jaune claire) au centre des éprouvettes rectangulaires. La surface de ces réseaux de nanolignes est de 25 mm^2 , ce qui fait à peu près 8000 nanolignes par échantillon. La coloration de ces régions est due à la diffraction de la lumière du jour sur les réseaux de nanolignes. En effet, la périodicité (longueur d'onde spatiale) des réseaux (600 nm comme montré présenté dans le chapitre 2) est dans le spectre visible. Les différences de couleur entre les échantillons sont dues à leurs légères désorientations vis-à-vis de la lumière, ce phénomène étant très sensible à l'angle d'incidence [2]. Bien que n'étant pas un résultat en soit, cette coloration est un moyen simple de vérifier que la nanostructuration a bien été effectuée sur l'ensemble de la région. Nous commençons ce chapitre par la présentation d'images AFM enregistrées au cours d'un essai de traction uniaxial le long de y (voir figure 6.1).

1. Essai de traction *in situ*

1.1. Images AFM

Le chemin de chargement de l'essai effectué pour un réseau de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ est présenté dans la figure 6.2 au travers de la courbe contrainte/déformation, pour lequel chaque relaxation correspond au temps de prise d'image.

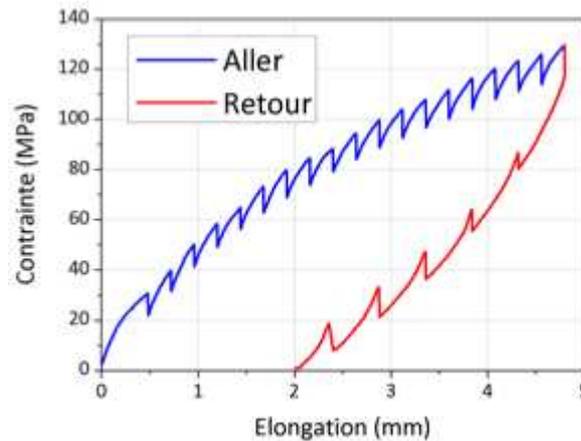
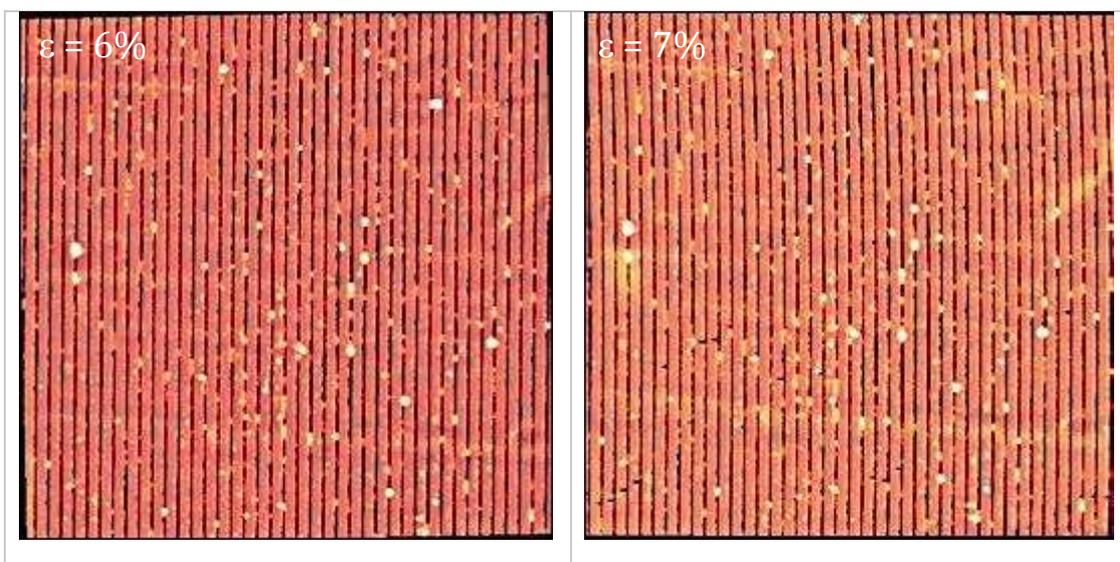
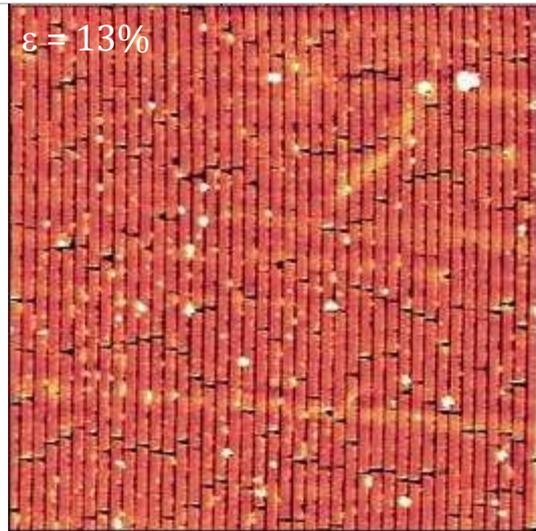
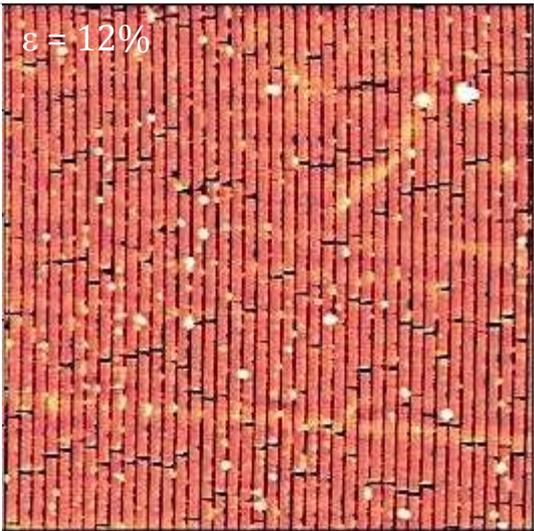
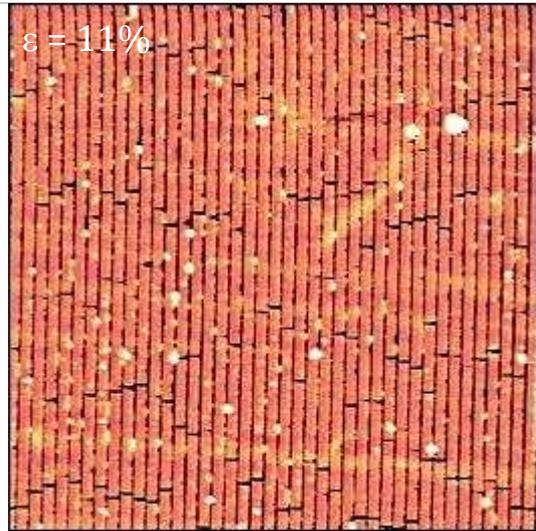
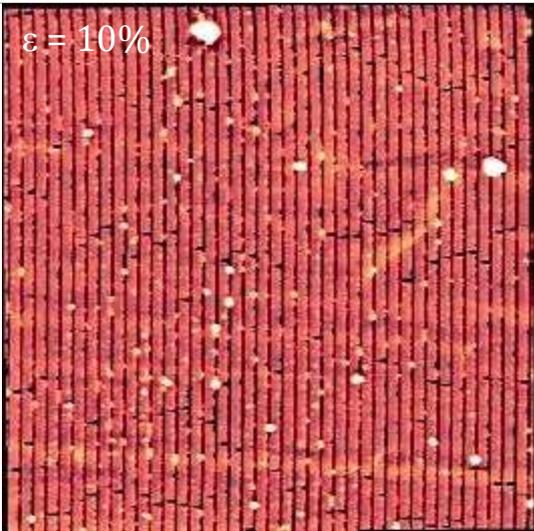
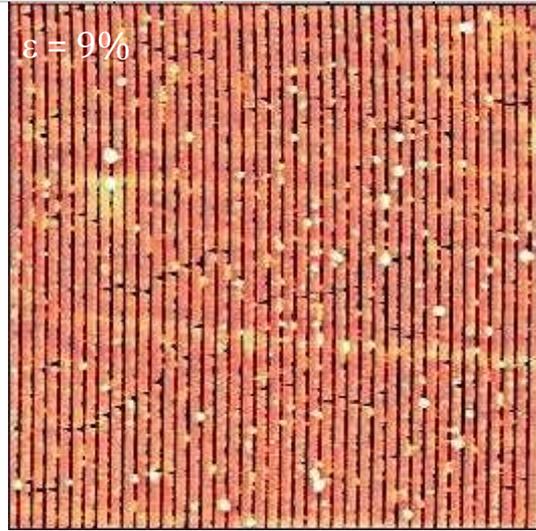
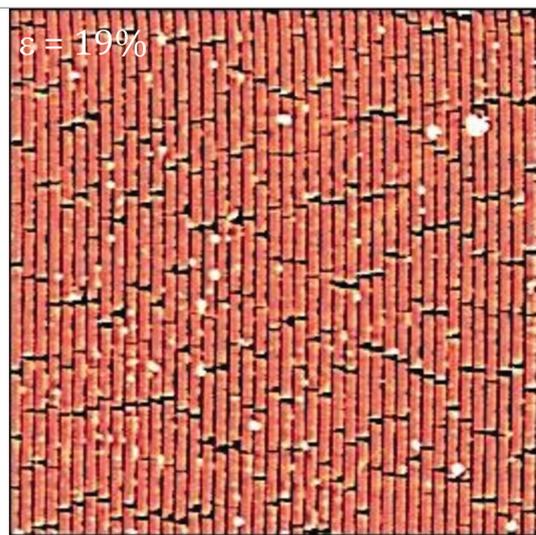
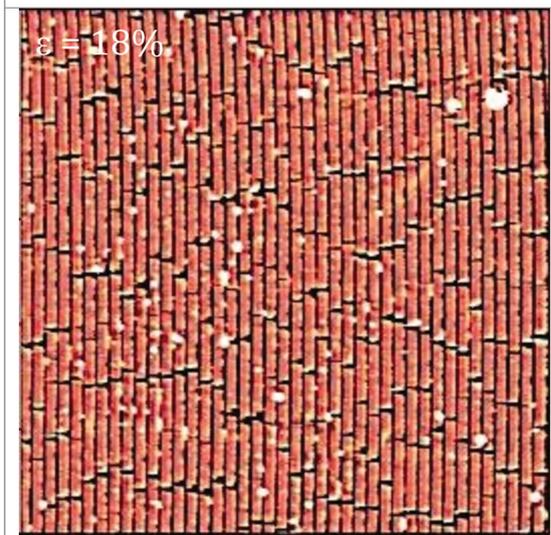
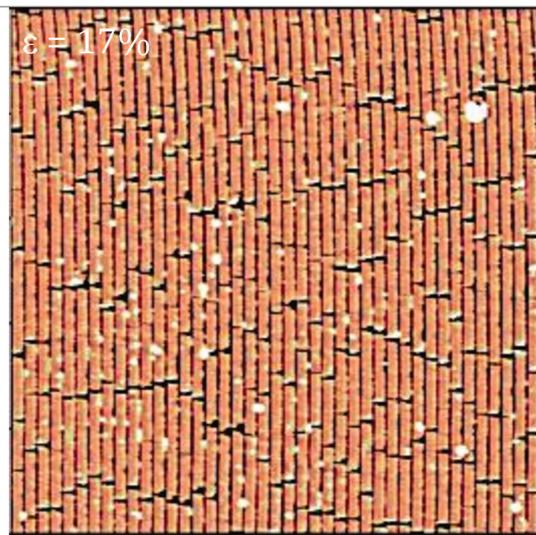
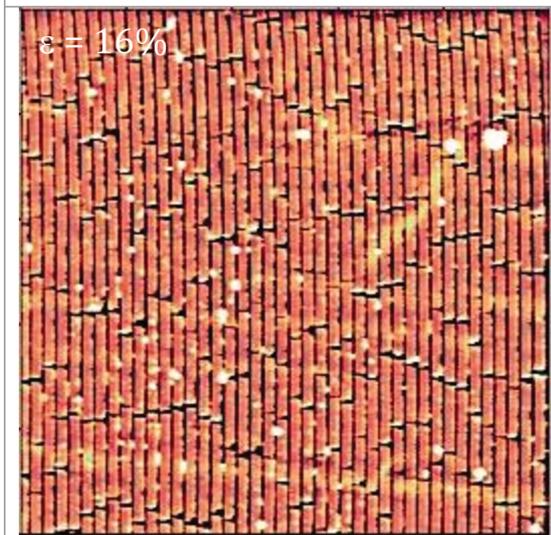
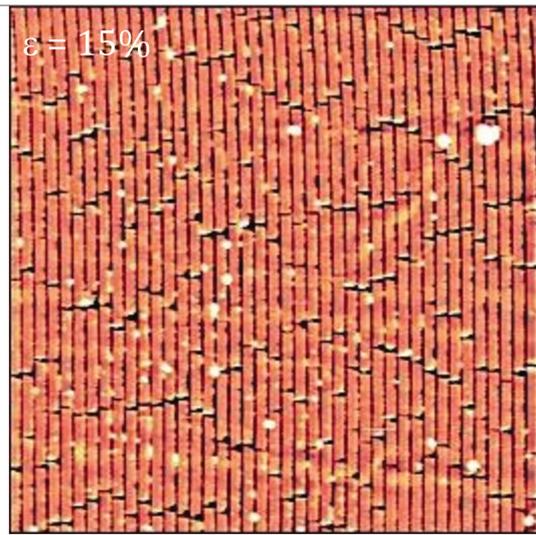
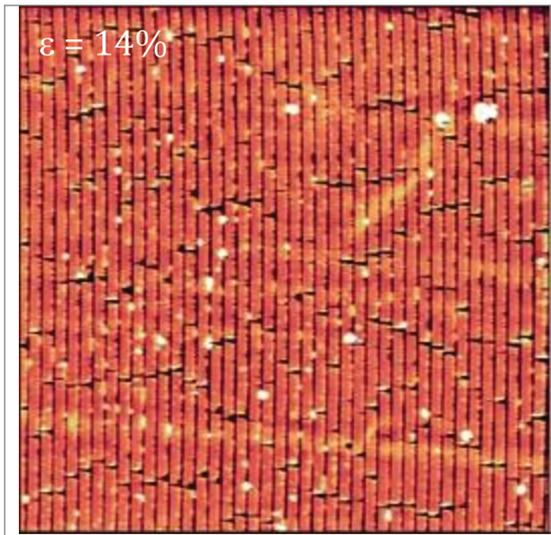


Figure 6.2 : Courbe contrainte/déformation obtenue par la traction d'un réseau de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (20 nm).

La figure 6.3 est présentée sur les quatre pages à partir de celle-ci. Sont représentées sur cette figure, les images AFM d'un réseau de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ soumis à des déformations allant de 0 à 20%. Nous avons enregistré les images AFM tous les 1% de déformation. Par ailleurs, nous avons également enregistré des images AFM tous les 2% de déformation lors de la décharge (de 20% à 10%). Les images présentées dans cette figure 6.3 sont classées dans l'ordre chronologique de leur enregistrement.







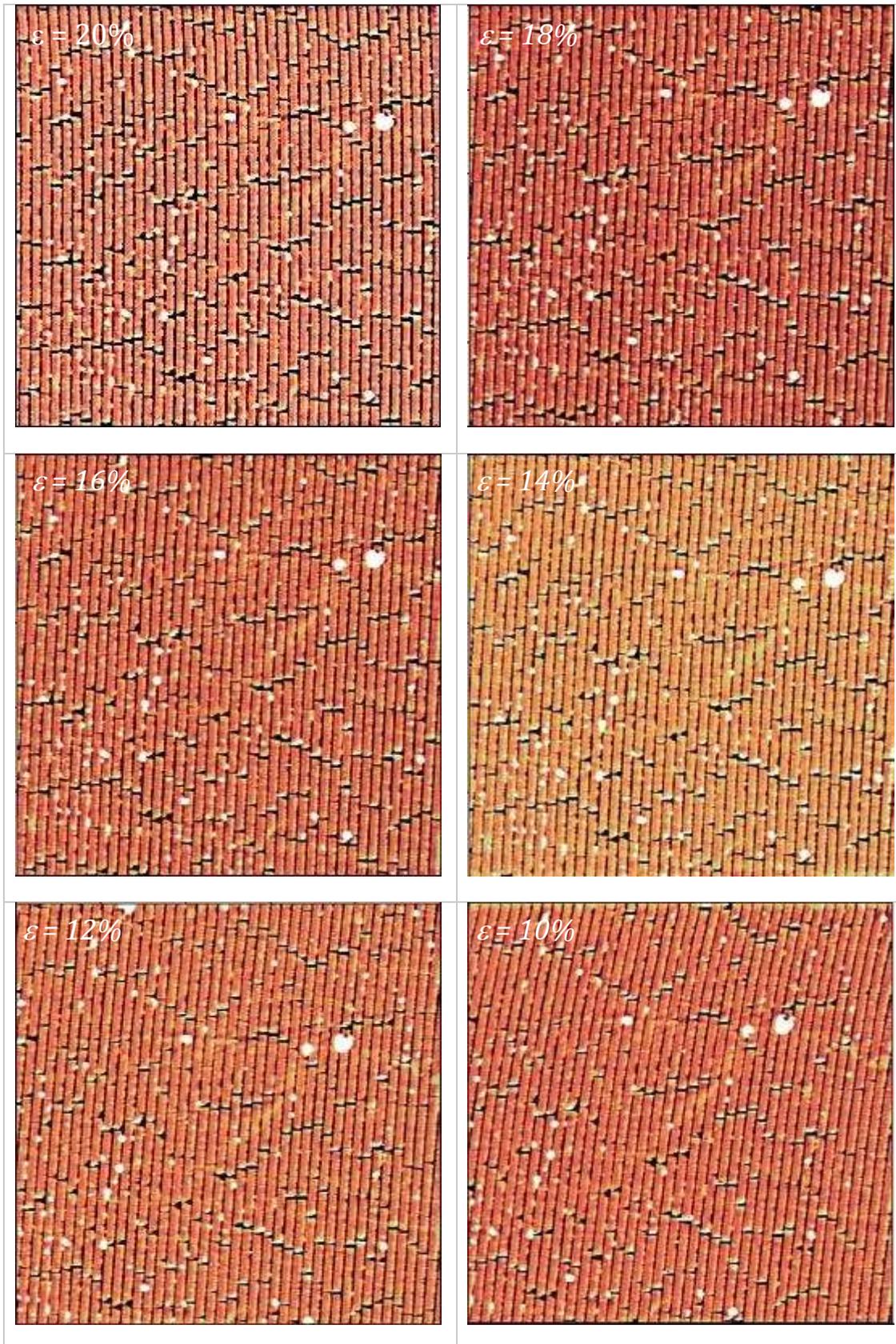


Figure 6.3 : Images AFM d'un réseau de nanolignes de $Ni_{80}Fe_{20}$ après chaque déformation appliquée. Ces images sont présentées dans l'ordre chronologique (charge jusque 20% puis décharge jusque 10%). Les points blancs sont dues à des poussières.

Les premières fissures apparaissent à partir d'une déformation critique de 7%, celle-ci était d'environ 2% pour les films minces $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ de 20 nm. Tout comme dans le cas des films minces, ces fissures sont assez droites au sein des nanolignes où elles apparaissent. Néanmoins, contrairement au cas « films minces », ces fissures ne traversent pas l'ensemble de l'échantillon, elle se limite dans un premier temps à une seule nanoligne. Puis, en augmentant la déformation, de nouvelles fissures apparaissent, un peu comme dans le cas « film mince ». Les nouvelles fissures apparaissent non loin des premières, ce phénomène se voit bien à partir de 9-10% de déformation. Ainsi, quand les fissures étaient réparties de manière plus ou moins uniforme au sein des films minces, elles sont ici regroupées par paquet. Ces fissures se propagent ainsi de proche en proche (de nanoligne en nanoligne). On sent bien ici que l'initiation des premières fissures a joué le rôle de point de nucléation pour les suivantes. Enfin, et c'est peut être le résultat le plus intéressant, nous n'avons pas observé la présence de fissures transverses (décohésion des nanolignes) au cours de cet essai. Cela n'est certainement pas dû à une énergie d'adhésion supérieure car il n'y a pas de raison que celle-ci est évoluait par rapport au cas « films minces ». Nous expliquerons cela par le fait que les champs de contraintes se localisent dans le substrat laissant ainsi les nanolignes libres (pas totalement) de contraintes.

1.2. Analyse quantitative

Comme dans le cas des films minces, nous pouvons évaluer la densité linéique de fissures en fonction de la déformation. Pour cela, nous avons effectué le décompte du nombre de fissures sur chaque image AFM, nombre que nous avons divisé par la dimension de l'image, divisé à nouveau par le nombre de nanolignes observables dans celle-ci. La figure 6.4 présente cette évolution pour des réseaux de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$. Notons ici que les images AFM associées à l'essai de traction réalisé sur l'échantillon de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ n'ont été enregistrées qu'à partir de 13% de déformation, ce qui ne veut pas dire que la fissuration n'a pas commencé pour des déformations plus faibles. Cependant, cette figure permet de montrer que la densité de fissures finale est plus élevée dans le cas des nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ que celui des nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$. Par ailleurs, on remarque que la fissuration est plus tardive (7% pour $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$) dans le cas de ces réseaux de nanolignes par rapport aux films minces (2%). Cela se voit particulièrement bien dans les figures 6.5-a) et 6.5-b).

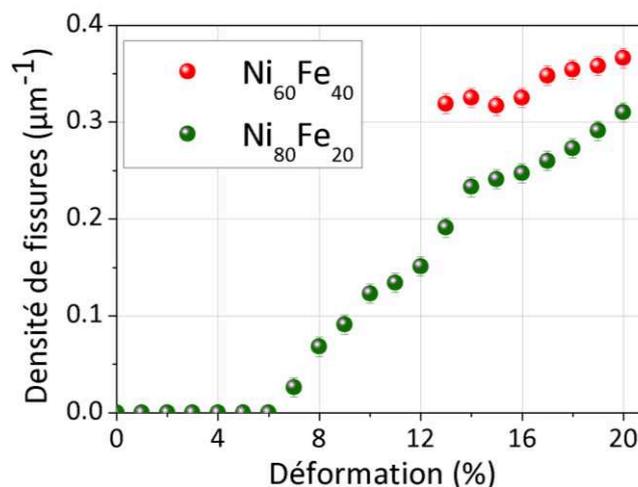


Figure 6.4 : Densité de fissures en fonction de la déformation des réseaux de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (symboles verts) et de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ (symboles rouges).

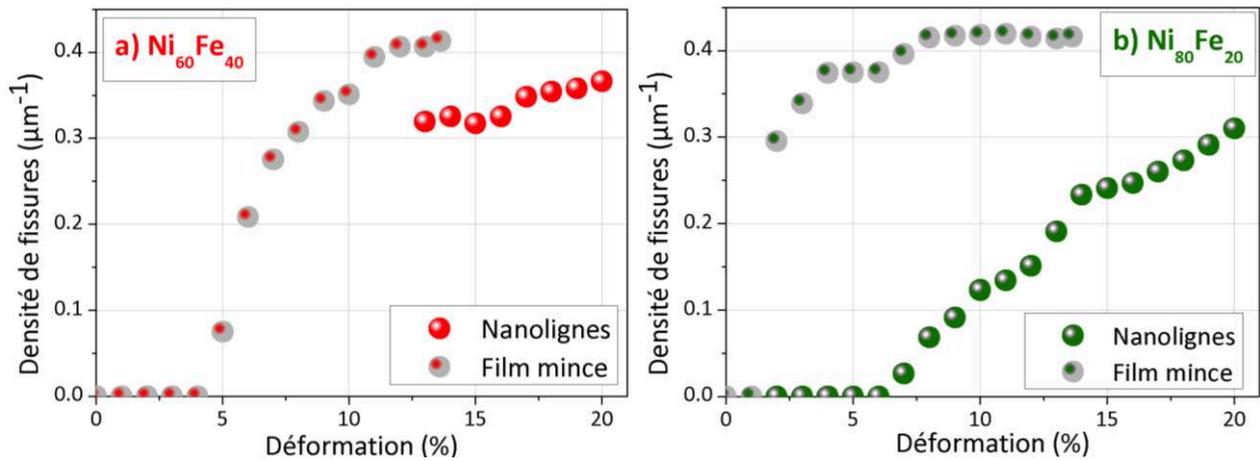


Figure 6.5 : Densité de fissures en fonction de la déformation des films minces (20 nm) et des réseaux de nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (symboles verts) et de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ (symboles rouges).

Ces figures présentent les densités de fissures mesurées sur les images issues des essais réalisés sur les films minces de 20 nm d'épaisseur et sur les réseaux de nanolignes de même épaisseur. On note que la valeur finale de la densité est moins élevée que dans le cas des films minces. L'évaluation de la densité de fissures dans le cas des nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ montre que la densité atteint une valeur de $0,37 \mu\text{m}^{-1}$ à 20% de déformation, alors qu'elle atteint une valeur de $0,41 \mu\text{m}^{-1}$ dans le cas des films minces pour une déformation beaucoup plus faible de 13%. Il en est de même avec les nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ par rapport à son homologue film mince. Par ailleurs, comme évoqué plus haut, les fissures au sein des nanolignes sont initiées pour des déformation plus élevée (7% au lieu de 2%). Ce retard à la fissuration est vraisemblablement lié à de probables effets de bords et une relaxation des contraintes dans les nanostructures par rapport aux films minces. On voit tout de suite l'intérêt que cela peut représenter d'un point de vue technologique car l'optimisation géométrique de réseaux de nanostructures 2D pourraient encore plus retarder voire éviter la fissuration pour des déformations usuelles de systèmes flexibles étirables (plusieurs dizaines de %). Un autre résultat tout aussi important est l'absence de décollements des nanolignes de deux matériaux, même après 20% de déformation.

La figure 6.6 montre un traitement binaire des images AFM prises à 20% de déformation pour les deux matériaux de cette étude. Ce traitement permet d'exacerber les discontinuités de la matière magnétique dues à la nanostructuration et aux fissures. Au niveau des mécanismes de fissuration, il semble que les nanolignes ne se fissurent pas de manière totalement indépendante. En effet, on voit se former à plusieurs endroits de l'image des chemins de fissuration en marches d'escalier pour les deux matériaux. Ceci laisse penser que le champ de contrainte dans le substrat généré par une fissure favorise la fissuration d'une ligne voisine à une localisation donnée (décalage de l'ordre du micron). Nous n'avons toutefois pas développé de modélisation pour supporter cette affirmation. Il serait intéressant dans des travaux expérimentaux futurs de faire varier la distance inter-nanolignes pour voir si ce phénomène évolue et dans quelle mesure.

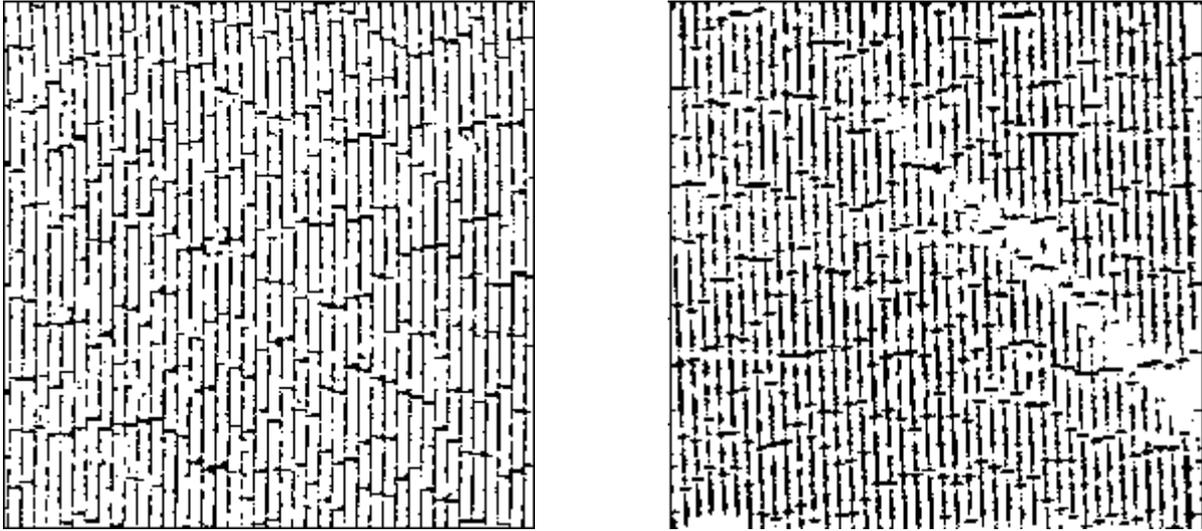


Figure 6.6 : Images AFM de nanostructures $Ni_{60}Fe_{40}$ et $Ni_{80}Fe_{20}$ après des déformations obtenues à 20%.

2. Propriétés magnéto-mécaniques

Cette section est composée de deux sous-sections. Dans la première, nous nous intéressons aux propriétés magnétiques des réseaux de nanolignes en l'absence de déformations mécaniques. La seconde étant dédié à l'influence des grandes déformations sur ces mêmes propriétés magnétiques.

2.1. Propriétés magnétiques en absence de déformation

Comme pour le cas des films minces, nous avons réalisé des mesures de résonance ferromagnétique en l'absence de déformation. Dans le cas des nanolignes, nous nous attendons à la présence d'une anisotropie uniaxiale qui est due à l'anisotropie de forme de ces nanolignes [3]. La première étape a été de vérifier que le signal de résonance était de bonne qualité. Ainsi, la figure 6.7 présente deux spectres réalisés sur un réseau de nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ avec un champ magnétique appliqué le long des nanolignes (courbe noire) et transversalement à celles-ci (courbe rouge). Par rapport aux films continus du même matériau, nous perdons environ un facteur deux sur le signal [2]. Cela s'explique par le plus faible volume magnétique en contact avec la ligne micro-ruban¹⁰, le signal reste néanmoins de bonne qualité et le rapport signal sur bruit relativement faible comme le montre la figure 6.7. La première observation qui peut être faite concerne la présence de deux modes de résonance lorsque le champ extérieur est appliqué perpendiculairement aux nanolignes. Une seconde observation est que les champs de résonances mesurées en géométrie parallèle et perpendiculaire sont très différents. Nous comprenons aisément cette différence grâce à la figure 6.8 qui présente la dépendance angulaire du champ de résonance. Nous avons la présence d'une anisotropie uniaxiale d'ordre 2 qui est une anisotropie de forme due à la nanostructuration. En outre, tout comme dans le cas des films minces, il est possible que la courbure de l'ensemble du système nanolignes/substrat entraîne la présence d'une anisotropie uniaxiale magnétoélastique qu'il est presque impossible de la discriminer de l'anisotropie de forme [4]. Cependant, compte tenu des ordres de grandeurs, on pense que cet effet dû à la courbure post-dépôt est négligeable dans les réseaux de nanolignes d'autant plus que les effets de bords libres supplémentaires peuvent avoir comme conséquence que ces effets de contraintes « résiduelles » sont moins ressentis par le milieu magnétique. Si l'on revient à la première observation, ce doublement de la raie de résonance est en fait dû à la présence de modes que l'on qualifie de « modes quantifiés » [5-7]. En effet, la longueur des ondes de spin que l'on sonde est du même ordre de grandeur que la largeur des nanolignes. Ainsi, on se retrouve devant un problème similaire à celui d'un électron confiné dans une boîte, la rupture de l'invariance par translation conduit ainsi à des effets de quantification, ce dernier entraînant des changements spectaculaires du spectre des ondes de spin (spectre discret des ondes stationnaires) [5-7].

¹⁰ Nous rappelons que le signal de résonance est proportionnel au volume magnétique excité par le champ radiofréquence généré par la ligne micro-ruban.

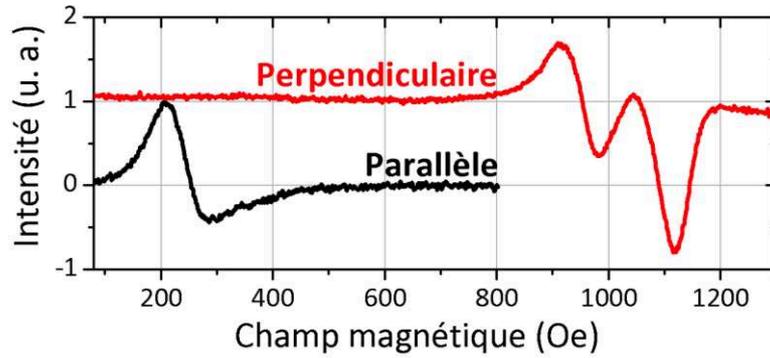


Figure 6.7: Spectres de résonance ferromagnétique typiques du réseau de nanolignes de $Ni_{60}Fe_{40}$ avec un champ appliqué parallèlement et perpendiculairement aux nanolignes.

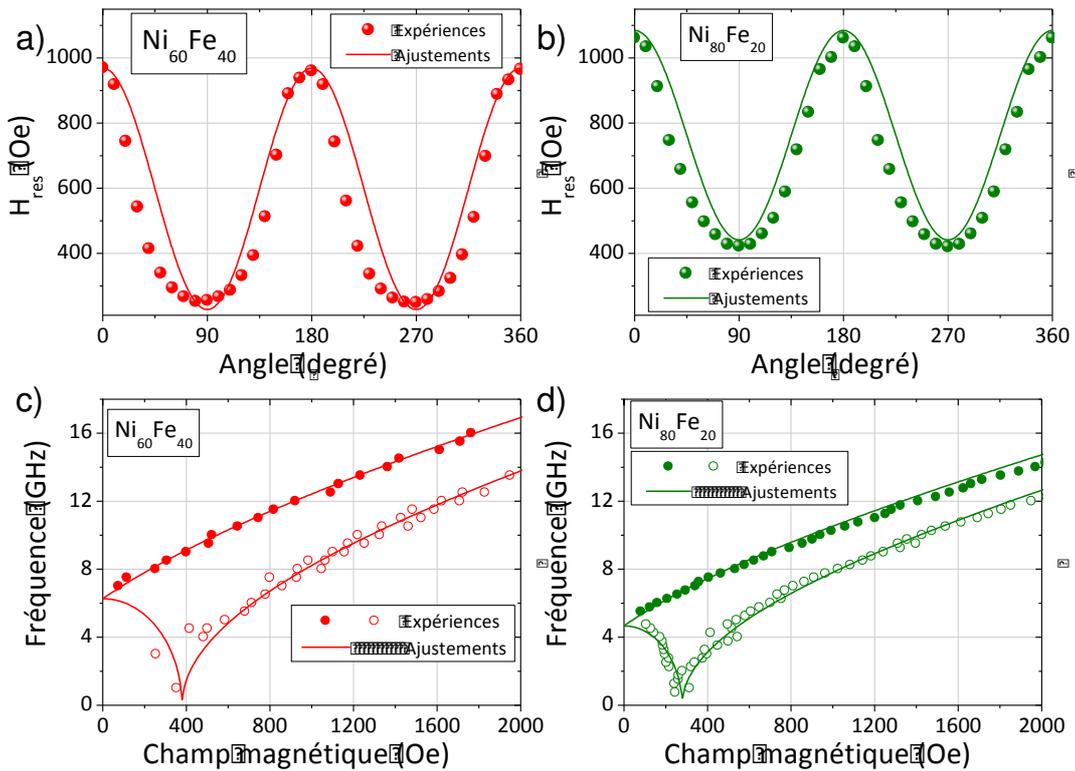


Figure 6.8: Dépendance angulaire du champ de résonance de nanolignes $Ni_{60}Fe_{40}$ et $Ni_{80}Fe_{20}$ avant traction.

Les deux modes que l'on voit dans le spectre « perpendiculaire » correspondent ainsi aux deux premiers modes quantifiés ($n=1$ et $n=2$). Le fait que le mode $n=2$ ne soit pas observable en géométrie parallèle est dû à des effets de « règles de sélection ». En effet, durant nos mesures le champ radiofréquence d'excitation \vec{h}_{rf} est toujours perpendiculaire au champ statique appliqué. Lorsque ce champ est appliqué le long des nanolignes, \vec{h}_{rf} est parallèle au vecteur d'onde des ondes de spin sondées ($\vec{h}_{rf} // \vec{q}_n$) alors qu'il est perpendiculaire lorsque le champ est appliqué transversalement aux nanolignes ($\vec{h}_{rf} \perp \vec{q}_n$). Par la suite, nous ne parlerons et ne représenterons que le mode $n=1$.

Ainsi, la figure 6.8 montre les dépendances angulaires et fréquentielles des réseaux de nanolignes de chacun des matériaux. Dans ces graphes, on voit clairement que la présence de l'anisotropie de forme conduit un champ d'anisotropie uniaxial. Les courbes en traits continus

correspondent aux ajustements théoriques en prenant les paramètres magnétiques de chacun des matériaux préalablement déterminés au chapitre 5. En effet ces paramètres sont connus pour être intrinsèque au matériau indépendamment de la structuration latérale. L'anisotropie légèrement plus grande pour les nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ s'explique par une aimantation à saturation plus élevée que celle du $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$.

2.2. Effet des grandes déformations

Le faible nombre d'échantillons ne nous a pas permis de réaliser un suivi régulier comme effectué pour les films continus. Cependant, nous avons jugé intéressant d'étudier l'effet d'une déformation macroscopique de 20% correspondant au chargement maximal qui avait été appliqué pour les films continus. Les figures 6.9 a) et b) présentent les dépendances fréquentielles avant et après application de cette déformation macroscopique pour les deux réseaux de nanolignes.

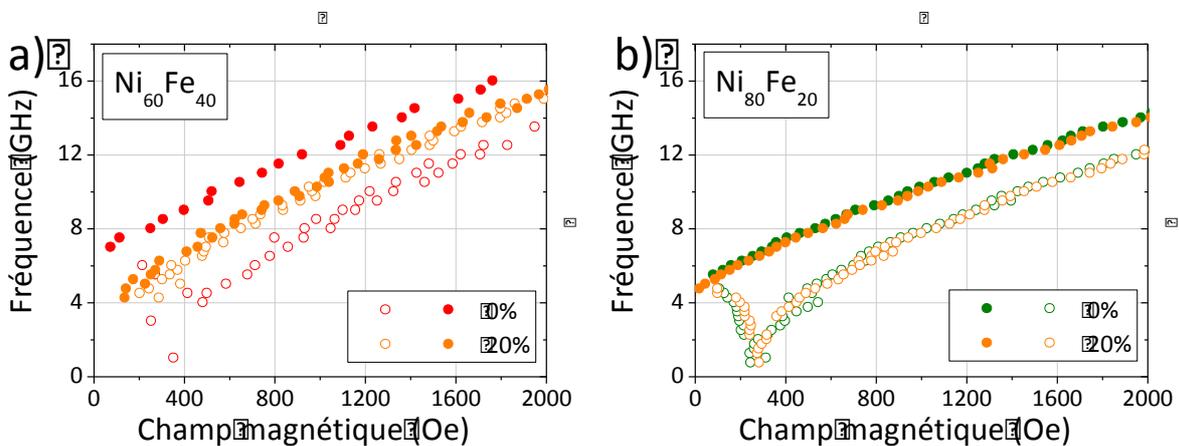


Figure 6.9: Dépendance fréquentielle du champ appliqué des nanolignes $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ (a) et $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (b) après 20% de déformation le long des nanolignes et transversalement aux nanolignes.

Dans le cas du $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ (figure 6.9-a), l'anisotropie de forme de départ est complètement compensée par les effets de déformation. Deux hypothèses peuvent être évoquées à ce stade : (i) est-ce que la fissuration des lignes annihile l'anisotropie de forme ? En effet la multifissuration provoque une brisure de symétrie par invariance selon y . (ii) est-ce un effet de contrainte résiduelle déjà évoqué pour les films minces dans le chapitre 5 ?

La réponse à la première question est évidente au vu des résultats obtenus pour les nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (figure 6.9-b). Les dépendances fréquentielles (donc l'anisotropie globale) ne subissent pas de modification malgré une densité de fissures équivalente aux nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$. Sa magnétostriction étant quasi-nulle, l'effet des contraintes résiduelles n'est pas applicable et l'on peut en déduire que l'anisotropie de forme des fragments qui subsistent est équivalente à celle des nanolignes infinies. On en déduit donc que l'anisotropie de forme des nanolignes de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ est compensée par un champ magnétoélastique dirigé suivant x (perpendiculairement à la traction) comme c'était le cas pour les films minces du matériau correspondant.

Principaux résultats en bref

- (i) Des réseaux de nanolignes (environ 8300) de période d'environ 600 nm de $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ et $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ont été fabriqués sur Kapton® par lithographie interférentielle.
- (ii) La multifissuration s'est révélée être différente de celle observée dans les films minces continus de composition et d'épaisseur équivalentes.
- (iii) Nous n'avons pas observé de décollements des nanolignes jusqu'à 20% de déformation macroscopique
- (iv) Les nanolignes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ sont très peu affectées par les grandes déformations. Ceci est sans doute dû au fait que l'anisotropie de forme magnétique d'une ligne « infinie » est assez proche de celle de fragments environ 5 fois plus longs que larges.

Bibliographie

- [1] Q. Xie, M.H. Hong, H.L. Tan, G.X. Chen, L.P. Shi, T.C. Chong, « Fabrication of nanostructures with laser interference lithography » *Journal of Alloys and Compounds* 449, 261 (2008).
- [2] F. Zighem, D. Faurie, M. Belmeguenai, A. Garcia-Sanchez, P. Lupo and A. O. Adeyeye, « Large area periodic ferromagnetic nanowires deposited onto a polymer substrate », *Applied Physics Letters* 111, 052408 (2017)
- [3] B. Heinrich and J. A. C. Bland, Eds., « Ultrathin Magnetic Structures », (Springer-Verlag, Berlin), vol. 2 (1994)
- [4] M. Gueye, P. Lupo, F. Zighem, D. Faurie, M. Belmeguenai, A. O. Adeyeye, « Unambiguous magnetoelastic effect on residual anisotropy in thin films deposited on flexible substrates », *Europhysics Letters* 114, 17003 (2017)
- [5] Z. K. Wang, M. H. Kuok, S. C. Ng, D. J. Lockwood, M. G. Cottam, K. Nielsch, R. B. Wehrspohn, and U. Gösele, « Spin-Wave Quantization in Ferromagnetic Nickel Nanowires », *Phys. Rev. Lett.* 89, 027201 (2002)
- [6] J. Jorzick, S. O. Demokritov, and B. Hillebrands, « Spin-wave quantization and dynamic coupling in micron-size circular magnetic dots », *Appl. Phys. Lett.* 75, 3859 (1999)
- [7] C. Mathieu, J. Jorzick, A. Frank, S. O. Demokritov, A. N. Slavin, B. Hillebrands, B. Bartenlian, C. Chappert, D. Decanini, F. Rousseaux, and E. Cambril, « Lateral Quantization of Spin Waves in Micron Size Magnetic Wires », *Phys. Rev. Lett.* 81, 3968 (1998)

Chapitre 7

Conclusions et Perspectives

Sommaire

-
1. Conclusions
 2. Perspectives
-

1. Conclusions

Cette thèse a eu pour objet les liens entre grandes déformations et propriétés magnétiques de films minces sur substrat flexible. Si les propriétés mécaniques de films minces ont fait l'objet d'études approfondies (plasticité, fissuration, délamination, ...) depuis une bonne vingtaine d'année, rares sont les travaux cherchant à relier les phénomènes mécaniques irréversibles aux phénomènes magnétiques. En effet, la plupart des études portant sur les grandes déformations de films magnétiques ont essentiellement porté sur l'étude des fonctionnalités sans identification des micromécanismes de déformation. L'objectif de cette thèse a été de dépasser cet état de l'art.

Trois matériaux couramment utilisés dans le domaine de la spintronique (CoFeB, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$) ont été fabriqués sur substrat de Kapton®, avec des épaisseurs variables (de 5 nm à 100 nm), sachant que les plus faibles épaisseurs sont généralement privilégiées dans ce domaine thématique. C'est tout l'enjeu du domaine émergent de la spintronique flexible/étirable qui doit satisfaire à cette exigence. En effet, nous avons montré dans cette thèse que les plus faibles épaisseurs étaient synonymes de densités de fissures et de décollements plus importantes. Quelque soit le matériau, pour les épaisseurs les plus faibles (5-20 nm), l'initiation de la multifissuration s'est montrée très précoce (déformation < 2%) et la multiplication des fissures très rapide jusqu'à une saturation à 7-8% de déformation. Ce n'est que pour une épaisseur de 50 nm que l'initiation du phénomène est un peu retardée. Nous avons montré de plus que lorsque la saturation de la densité de fissures était atteinte, conjuguée à la plasticité du substrat, celles-ci avaient tendance à se propager dans le substrat.

Au delà de 7-8% de déformation, c'est un autre régime qui prend le relais avec l'apparition et la multiplication de décollements sous forme de cloques le plus souvent triangulaires s'initiant le long des fissures. Ce phénomène est très marqué pour les films les plus fragiles (CoFeB et $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ de faibles épaisseurs). A partir de ces décollements, nous avons étudié les propriétés d'adhésion du système CoFeB(20 nm)/Kapton® en appliquant un modèle couramment utilisé (modèle de Cordill). Nous avons illustré par nos mesures que l'utilisation de ce modèle devait être effectuée avec précaution car les estimations de l'énergie d'adhésion qui en découlent sont à la fois très dépendantes de la justesse de l'ajustement aux données expérimentales qui sont elles mêmes très dispersées et de l'état de déformation macroscopique du système. Malgré ces réserves, les valeurs d'énergie d'adhésion minorées que l'on a estimées sont assez élevées pour un système métal/polymère (quelques J.m^{-2}).

Au delà des propriétés mécaniques, nous avons ensuite examiné les propriétés magnétiques de ces systèmes. Dans un premier temps, nous avons estimé par actionnement piezoélectrique et résonance ferromagnétique *in situ* les propriétés magnétoélastiques des 3 matériaux, propriétés connues pour être peu dépendantes de l'épaisseur dès lors que celle-ci dépasse quelques nanomètres, à l'image des propriétés élastiques de films minces. Ces données récoltées à petites déformations se sont avérées importantes pour interpréter les résultats à plus grandes déformations. Qui plus est, ces données sont mal connues pour les nouveaux alliages tels que le CoFeB. Si le CoFeB et le $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$ ont un coefficient de magnétostriction effectif non négligeable et positif, nous avons vérifié que nos films de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (permalloy) avaient un coefficient de magnétostriction nul.

Par la suite, nous avons identifié les effets *ex situ* des grandes déformations et particulièrement des régimes « fissures » et « fissures + décollements ». Par exemple, dans le cas des films de CoFeB, le champ d'anisotropie magnétique subit deux changements de signe, le

premier étant attribué au champ de contraintes résiduelles lié à la distribution de fissures, et le deuxième à la forte relaxation de contrainte transverse à l'axe de traction déjà observée lors de la phase de délamination post-multifissuration. De plus, dans ces mêmes films de CoFeB, on note un fort accroissement du coefficient d'amortissement de Gilbert en fonction de la déformation macroscopique. Ceci a également été observé dans les films de Ni₆₀Fe₄₀ (à un degré moindre) mais très peu pour le Ni₈₀Fe₂₀ ce qui est lié à son faible coefficient de magnétostriction. En effet le coefficient de Gilbert est directement lié aux hétérogénéités du matériau, en l'occurrence de déformation dans notre cas. Ainsi, un matériau peu sensible par nature (magnétiquement) aux déformations élastiques a la propriété remarquable de se comporter de manière quasi-similaire qu'il soit « intacte » ou présentant de fortes densités de fissures et de cloques. Ceci est sans doute dû au fait que les distances inter-fissures et inter-cloques sont un peu trop grandes pour induire des anisotropies de formes significatives.

Enfin, nous avons étudié l'effet de la nanostructuration sur les propriétés mécaniques et magnétomécaniques pour les systèmes Ni₆₀Fe₄₀ et Ni₈₀Fe₂₀ d'épaisseur de 20 nm. Des réseaux de nanolignes de période d'environ 600 nm ont été fabriqués sur Kapton® par lithographie interférentielle. Nous avons d'abord étudié la multifissuration de ces systèmes qui s'est révélée être différente de celle observée dans les films minces continus de composition et d'épaisseur équivalentes. D'une part, la multifissuration est largement retardée (6% au lieu de 1,8%) à cause de probables effets de bords et de transferts des contraintes dans le substrat. D'autre part, la multiplication des fissures semble s'effectuer par un mécanisme lié aux champs élastiques dans le substrat (entre les nanolignes). En effet, il existe une proximité des fissures « nanoligne à nanoligne » qui semble aller dans ce sens. De plus, nous n'observons pas de décollements des nanolignes jusqu'à 20% de déformation macroscopique. Concernant l'effet de ces grandes déformations sur les propriétés magnétiques, il est remarquable d'observer que les nanolignes de Ni₈₀Fe₂₀ étaient très peu affectées par une densité de fissures très importante (quoique plus faible que pour les films minces continus de même épaisseur). Ceci est sans doute dû au fait que l'anisotropie de forme d'une ligne « infinie » est assez proche de celle de fragments environ 5 fois plus longs que larges.

2. Perspectives

Ces investigations sont toujours en cours et ces résultats encouragent le groupe Finano du LSPM à réaliser de nouveaux développements instrumentaux pour suivre *in situ* le comportement magnétique lors de grandes déformations (ce qui n'est pas possible avec les actionneurs piézoélectriques par exemple) avec un contrôle de la biaxialité des contraintes dans le plan du film mince. Les techniques permettant le contrôle des déformations selon plusieurs axes avec des sondes magnétiques *in situ* font encore défaut au niveau international. Ainsi, l'équipe Finano a l'intention de développer une instrumentation pour l'étude simultanée de l'évolution des propriétés magnétiques et des déformations du film et du substrat lors des essais de traction biaxiale, en collaboration avec Soleil Synchrotron (Gif sur Yvette) et l'institut Pprime (Poitiers). Pour atteindre cet objectif, l'équipe met au point un ensemble expérimental unique situé sur la ligne DiffAbs de ce synchrotron. Il combinera les techniques complémentaires suivantes: (i) Une machine de traction biaxiale (figure 7.1) dédiée aux substrats polymère (ii) Diffraction des rayons X pour le suivi *in situ* des champs de contrainte dans les films minces (iii) Corrélation d'image pour le suivi des déformations macroscopiques du substrat (iv) Un magnétomètre MOKE permettant de mesurer *in situ* les cycles d'aimantation. Ce projet est partiellement financé par la Région Ile de France et un projet ANR impliquant l'Institut Pprime, Soleil Synchrotron, SImap (Grenoble) et l'équipe Finano (LSPM) a été déposé. Ainsi, il sera possible d'explorer *in situ* les effets de fissures qui peuvent être plus complexes lors d'essais biaxiaux (figure 7.1).

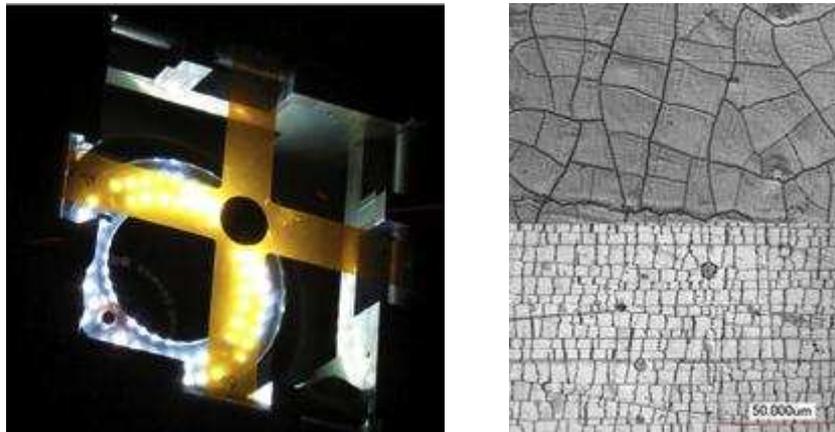


Figure 7.1 : Gauche : machine de traction biaxiale. Droite : motifs de fissures issus d'un essai equibiaxial (haut) et complexe (bas).

Par ailleurs, l'équipe Finano souhaite s'attaquer à l'influence du substrat. En effet, nous avons constaté durant cette thèse que la fermeture ou non des fissures dépendait fortement de la plasticité du substrat. En l'occurrence, un substrat fortement élastique (typiquement un élastomère de type PDMS) va être plus favorable que le Kapton® à la fermeture des fissures lors de chaque décharge d'un essai cyclique. Ceci doit se traduire par un comportement magnétique plus réversible sous déformation, et donc plus prévisible en vue des applications. Ainsi, il est primordial de contrôler les propriétés mécaniques du substrat, notamment en maîtrisant sa synthèse chimique, sa mise en forme, et des traitements de surfaces favorisant l'adhésion des couches magnétiques. Ceci doit conditionner la fiabilité et la durabilité des films minces

fonctionnels sur lesquels ils sont déposés. C'est l'objet d'une collaboration naissante avec le laboratoire Itodys (Paris-Diderot) qui va apporter ses compétences en fonctionnalisation de surfaces, synthèse de polymères et matériaux hybrides. L'impression par jet d'encre sera utilisée pour fonctionnaliser le PDMS dans le but de modifier ses propriétés de contact (rugosité, énergie de surface) en vue du dépôt des films magnétiques. Ceci va être effectué dans le cadre d'un projet structurant du Labex SEAM porté par l'équipe Finano. L'ensemble de ces projets devrait permettre une meilleure compréhension et optimisation des propriétés des systèmes magnétiques flexibles/étirables.

Résumé

Les systèmes magnétiques flexibles et étirables sont d'intérêt croissant pour le développement de dispositifs électromagnétiques conformables aux surfaces non planes. Dans ce contexte, l'objectif de cette thèse est d'identifier des relations entre phénomènes mécaniques irréversibles (fissuration et délamination) aux grandes déformations et propriétés magnétiques de films minces d'épaisseurs nanométriques (alliages de CoFeB et NiFe) élaborés sur substrat polymère (Kapton®) par pulvérisation magnétron. Dans un premier temps, des essais de traction couplés *in situ* à la microscopie à forces atomiques ou des mesures de résistance électrique ont permis d'étudier la multifissuration des films minces et les décollements localisés (cloques) subséquents. Ces mesures ont permis de mettre en évidence des domaines de déformations macroscopiques pour lesquels chaque mécanisme était prépondérant. De plus l'énergie d'adhésion a pu être discutée et estimée à partir du suivi des cloques sous déformation. Dans un second temps, des mesures par résonance ferromagnétique effectuées *ex situ* ont permis de relier les domaines des déformations identifiés précédemment aux évolutions de l'anisotropie magnétique des films minces. De plus, une corrélation entre hétérogénéités de déformations et coefficient d'amortissement de Gilbert a été trouvée. Enfin, les propriétés magnéto-mécaniques de réseaux de nanolignes de NiFe ont permis de mettre en évidence l'intérêt de la nanostructuration pour ces systèmes magnétiques déformables.

Abstract

Flexible and stretchable magnetic systems are of increasing interest for the development of electromagnetic devices conformable to non-planar surfaces. In this context, the objective of this thesis is to identify the relationships between irreversible mechanical phenomena (cracking and delamination) at large strains and magnetic properties of thin films of nanometric thicknesses (CoFeB and NiFe alloys) deposited on polymer substrate (Kapton®) by magnetron sputtering. In a first time, tensile tests coupled *in situ* with atomic force microscopy or electrical resistance measurements were used to study thin film multifissuration and subsequent localized debonding (buckles). These measurements made it possible to highlight areas of macroscopic strains for which each mechanism was predominant. In addition, the adhesion energy could be discussed and estimated from the monitoring of the buckles under applied strain. In a second step, ferromagnetic resonance measurements carried out *ex situ* made it possible to link the previously identified areas of strains to the evolutions of the magnetic anisotropy of thin films. In addition, a correlation between strain heterogeneities and Gilbert damping coefficient was found. Finally, the magnetomechanical properties of NiFe nanowires arrays have made it possible to highlight the advantage of nanopatterning for these deformable magnetic systems.