

# Couches minces et nanostructures magnétiques

Olivier Fruchart

Fonction : Chargé de recherches au CNRS. Laboratoire Louis Néel, grenoble.

Les couches minces, nanostructures et hétérostructures magnétiques présentent des comportements différents et des fonctionnalités nouvelles par rapport aux matériaux massifs : effets thermiques et anisotropie exaltés, domaines et parois spécifiques, effets de magnétotransport géants etc. Ces effets et leur mise en œuvre sont décrits ici, suivis d'exemples de leur intégration technologique dans les domaines de l'électronique et de la médecine : disques durs, capteurs de champ, traceurs etc.

## 1 Préambule

Nota: Nous proposons ici un panorama des propriétés des couches minces et nanostructures magnétiques. Certains aspects ont été ponctuellement traités ou approfondis dans d'autres articles des TI, notamment [Nozières, Geoffroy, Hehn](#).

Une couche mince est une mise en forme de matériau dont une dimension, l'épaisseur, est réduite. On parle de nanostructure lorsque un ou deux des autres dimensions sont également réduites ; on parle respectivement de bandes et de plots. Les propriétés des couches minces, et plus encore des nanostructures, sont modifiés par rapport aux matériaux massifs dont elles sont constituées. Il est donc nécessaire de les étudier. Du fait de leur géométrie simple, les couches minces sont les systèmes les plus faciles à analyser. Ce sont souvent les mêmes effets qui interviennent dans les nanostructures, mais dans une géométrie différente et plus compliquée. Nous commençons donc à décrire les couches minces, puis les nanostructures, pour terminer par les mises en forme et applications.

## 2 Propriétés des couches minces

L'aimantation macroscopique d'un matériau magnétique résulte de moments magnétiques atomiques, qui s'ordonnent parallèlement (ferromagnétiques, F) ou antiparallèlement [antiferromagnétique (AF) en cas de compensation parfaite, ferrimagnétique en cas de moment résultant] en dessous d'une température critique appelée température de Curie  $T_c$  pour F, de Néel  $T_N$  pour AF. En dessous de  $T_c$  l'aimantation suit des directions privilégiées ; on parle d'*anisotropie magnétique*. Ces deux propriétés, abordées ici en premier, sont dites *microscopiques*, ou encore *intrinsèques*, car elles ne dépendent que de la structure atomique locale des composés utilisés. Elles sous-tendent les propriétés extrinsèques comme les domaines et le renversement d'aimantation, présentées ensuite.

### 2.1 Propriétés microscopiques

#### 2.1.1 Température de Curie

##### 2.1.1.1 Argumentation de l'abaissement de la température de Curie

Dans la théorie de champ moyen dite du *champ moléculaire*  $T_c$  est proportionnelle

au nombre  $z_0$  d'atomes plus proches voisins :  $T_c = K.z_0$  (TI Geoffroy). Or dans une couche mince le nombre *moyen* d'atomes plus proches voisins  $z(N)$  est inférieur à  $z_0$  en raison des atomes présents aux deux surfaces :  $z(N) = z_0 - 2(z_0 - z_s)/N$  où  $N$  est le nombre de plans atomiques et  $z_s$  le nombre de plus proches voisins magnétiques d'un atome de surface. On s'attend donc à une décroissance de  $T_c$  pour les couches très minces, suivant  $1/N$ , avec un effet de 50% par rapport au composé massif atteint pour quelques plans atomiques, soit  $\leq 1\text{nm}$ . Cette épaisseur peut sembler faible pour s'en soucier pour les applications, mais en fait elle se rencontre couramment dans les *multicouches*, où c'est l'épaisseur de chaque couche qui compte pour  $T_c$ , pas l'épaisseur totale de multicouche

**Exemple :** La température de Curie de multicouches Co/Pt à aimantation perpendiculaire, où l'épaisseur des couches de Co est 1 nm au plus, ne dépasse pas quelques centaines degrés, contre  $1121^\circ\text{C}$  en massif.

En pratique l'apparition du magnétisme est parfois repoussée à des épaisseurs très supérieures à la valeur théorique donnée ci-dessus, si le procédé d'élaboration requiert une épaisseur minimum pour établir une bonne structure du matériau, notamment des composés (ferrites, alliages Sm-Co ou Nd-Fe-B etc.), ou en cas d'alliage aux interfaces. Le procédé de fabrication est donc crucial pour les couches ultramincees.

## 2.1.2 Anisotropies magnétiques dérivées de l'état massif

La maîtrise de l'anisotropie magnétique est nécessaire pour le bon fonctionnement d'un dispositif. Il est donc important de passer en revue les différentes sources d'anisotropie pouvant exister en couche mince, et de souligner les différences par rapport aux matériaux massifs. Ce paragraphe traite des sources d'anisotropie magnétique existant à l'état massif, et quelles sont leurs spécificités lorsqu'elles s'appliquent aux couches minces. Le paragraphe suivant traite de nouvelles sources d'anisotropie, spécifiques aux couches minces.

### 2.1.2.1 Anisotropie dipolaire

L'énergie dipolaire  $E_d$  est l'énergie d'interaction dipolaire mutuelle, qui agit entre tous les moments magnétiques d'un système. Rappelons deux manières d'exprimer cette énergie, que nous utiliserons dans cet article. Exprimée entre deux moments magnétiques ponctuels  $\mu_1$  et  $\mu_2$  décalés d'un vecteur  $r$ ,  $E_d$  s'écrit, à une constante près :

$$(1) E_d = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[ \frac{\mu_1 \cdot \mu_2}{r^3} - 3 \frac{(\mu_1 \cdot r)(\mu_2 \cdot r)}{r^5} \right]$$

On peut montrer que  $E_d \geq 0$ . On peut également écrire  $E_d = -\mu_0 \mu_1 \mathbf{H}_{d,2}(\mathbf{r})$  où  $\mathbf{H}_{d,2}(\mathbf{r})$  est le champ rayonné par le dipôle  $\mu_2$  :

$$(2) \mathbf{H}_{d,2}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi r^3} \left[ \frac{3(\mu_2 \cdot \mathbf{r})\mathbf{r}}{r^2} - \mu_2 \right]$$

Dans une approche de milieu continu, et en utilisant l'analogie entre l'électrostatique et la magnétostatique, l'énergie dipolaire d'un système caractérisé par une distribution d'aimantation microscopique  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  s'écrit :

$$(3) E_d = -\frac{\mu_0}{2} \int_V \mathbf{M}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{H}_d(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

Le champ dipolaire  $\mathbf{H}_d(\mathbf{r})$  se calcule de la manière suivante connaissant la distribution de  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  :

$$(4) \mathbf{H}_d(\mathbf{r}) = \int \frac{\rho(\mathbf{u})(\mathbf{r} - \mathbf{u})}{|\mathbf{r} - \mathbf{u}|^3} d^3u + \oint \frac{\sigma(\mathbf{u})(\mathbf{r} - \mathbf{u})}{|\mathbf{r} - \mathbf{u}|^3} dS$$

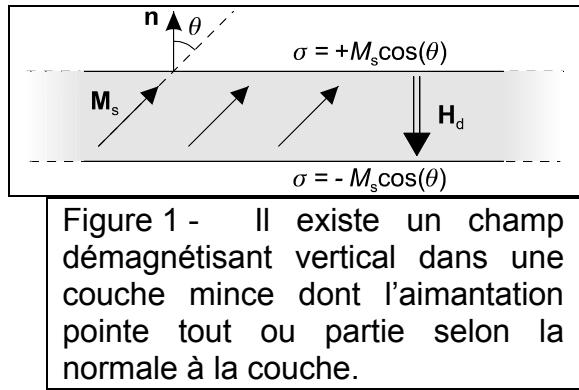


Figure 1 - Il existe un champ démagnétisant vertical dans une couche mince dont l'aimantation pointe tout ou partie selon la normale à la couche.

La première intégrale est effectuée sur le volume aimanté, la seconde sur sa surface.  $\rho = -\text{div} \mathbf{M}$  sont dites les charges magnétiques de volume,  $\sigma = \mathbf{M} \cdot \mathbf{n}$  les charges magnétiques de surface avec  $\mathbf{n}$  la normale orientée vers l'extérieur. Étudions le cas d'une couche mince, que l'on suppose d'épaisseur constante et de dimensions latérales infinies. Supposons que l'aimantation du système est uniforme, et étudions son énergie en fonction de la direction de l'aimantation, repérée par l'angle  $\theta$  fait avec la normale à la couche (Figure 1 - ). Appliquons les équations (3) et (4). Chaque surface porte une densité de charges uniforme,  $\pm M_s \cos \theta$ . Le champ dipolaire est uniforme dans la couche et vaut  $\mathbf{H}_d = -M_s \cos \theta \mathbf{u}_z$ , et est donc vertical et globalement opposé à l'aimantation, d'où le nom de champ démagnétisant. L'équation (3) permet d'établir que l'énergie dipolaire par unité de volume vaut  $K_d \cos^2 \theta$ , avec la notation usuelle  $K_d = \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2$ . On peut dire qu'une couche mince a un coefficient de champ démagnétisant égal à 1 dans la direction perpendiculaire, voir 3.1.1.5.

Exemple :  $M_s = 1.73 \times 10^6 \text{ A/m}$  pour le Fe et  $M_s = 1.45 \times 10^6 \text{ A/m}$  pour le Co, soit 2.17 T et 1.82 T pour  $\mu_0 M_s$ , respectivement. Le Tableau 1 - donne d'autres exemples.

Pour la plupart des matériaux (exception faite des aimants permanents, ou des couches ultramince à anisotropie de surface, voir 2.1.3.1) l'énergie mise en jeu est grande devant toutes les autres énergies, en particulier l'énergie magnétocristalline, voir ci-dessous. C'est donc l'énergie dipolaire qui l'emporte, et impose que les couches minces sont généralement d'axe perpendiculaire difficile, et de plan facile. Pour caractériser la force du champ dipolaire on peut mesurer un cycle d'hystérosis dans la direction perpendiculaire au plan, qui est de difficile aimantation. La courbe idéale est réversible, et linéaire jusqu'au champ de saturation  $\mu_0 M_s$ .

### 2.1.2.2 Anisotropie magnéto-cristalline

L'anisotropie magnétocristalline  $E_{mc}$  apparaît dans les matériaux cristallins : l'aimantation tend à s'orienter dans certaines directions ou plans, en relation avec les directions cristallographiques (TI Geoffroy). En pratique cette énergie est développée sous forme de cosinus (ou sinus) directeurs de l'aimantation par rapport à certains axes du cristal, par exemple  $E_{mc} = K \cos^2 \theta$  pour le cas, courant, d'une anisotropie uniaxiale d'ordre 2. Cette énergie étant d'origine locale, elle existe donc dans les couches minces comme dans les matériaux massifs. La ou les directions de facile aimantation vont donc dépendre de l'orientation des cristaux constituant la couche

mince. Ceci souligne l'importance de la méthode de préparation, dont le choix et l'optimisation influencent l'orientation, la taille, la dispersion de ces grains. Les conséquences de l'existence de grains sur les propriétés magnétiques sont présentées au 2.3.1.

### 2.1.3 Anisotropie : aspects spécifiques aux couches minces

Nous avons vu ci-dessus que l'énergie magnétocristalline est liée à l'environnement cristallin des atomes d'un matériau. Dans les couches minces cet environnement est souvent modifié par rapport au matériau massif, induisant une anisotropie magnétique spécifique. On distingue deux contributions, l'anisotropie d'interface et l'anisotropie magnétoélastique.

#### 2.1.3.1 Anisotropie d'interface

Aux deux surfaces d'une couche mince l'environnement local des atomes diffère de celui au cœur de la couche. Cette différence induit, pour chaque interface et chaque constante du développement angulaire de l'énergie d'anisotropie, un terme correctif à l'anisotropie magnétocristalline du massif  $K_V$ , appelé *anisotropie d'interface ou de surface*, et notée  $K_S$ . Tout comme  $K_V$ ,  $K_S$  peut favoriser aussi bien un axe dans le plan qu'hors du plan, et comporter des termes de divers ordres. Comme  $K_S$  ne s'applique qu'une fois pour chaque interface, la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline totale s'écrit, dans le cas simplifié de deux interfaces similaires :

$$(5) K_{mc}(e) = K_V + \frac{2K_S}{e}$$

En pratique, l'effet de  $K_S$  n'est significatif que pour des épaisseurs  $e$  de quelques nanomètres au plus ; on parle alors de *couche ultramince*. La méthode expérimentale pour déterminer  $K_S$  est de représenter pour des couches ultraminces la variation de  $K_{tot}(e)$  en fonction de  $1/e$ .  $K_S$  dépend des couples de matériaux, avec un signe variable et une valeur maximum d'environ  $0.1 \text{ mJ/m}^2$ . L'effet le plus utile technologiquement, apparaît lorsque  $K_S$  favorise l'orientation de l'aimantation perpendiculairement à la couche :  $E_S = K_S \cos^2 \theta$  avec  $K_S < 0$ . Si  $K_S$  est suffisamment grand alors pour une épaisseur critique  $e_C$  l'anisotropie d'interface compense l'anisotropie dipolaire :  $\frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 + K_{mc}(e) < 0$ . La direction de facile aimantation devient alors la normale à la couche. On parle alors d'*anisotropie perpendiculaire*.

Exemple : Le couple de matériaux le plus utilisé pour l'anisotropie perpendiculaire est Pt/Co/Pt, avec  $e_C \approx 1 \text{ nm}$ . Il peut être également utilisé sous forme de composé, CoPt ou Co<sub>3</sub>Pt (Tableau 1 - ). D'autres exemples sont Au/Co/Au ( $e_C \approx 1.5 \text{ nm}$ ) et Pd/Co/Pd ( $e_C \approx 2 \text{ nm}$ ). La mise en œuvre implique en général des multicoques pour obtenir un signal magnétique significatif.

Pour conclure ce paragraphe, insistons sur le fait que, même si les grandes tendances sont établies dans le domaine, les valeurs d'anisotropie d'interface ne doivent pas être considérées comme universelles. On remarque des différences suivant la méthode d'élaboration (différence de rugosité, mélanges aux interfaces).

### 2.1.3.2 Anisotropie magnéto-élastique

L'énergie magnéto-élastique est une correction faite à l'énergie magnéto-cristalline et liée à une déformation de la maille cristalline, en taille et/ou en symétrie. Dans le massif la déformation est appliquée par un opérateur extérieur au système pendant une mesure. Dans une couche mince, il existe *toujours* des déformations même en l'absence d'opérateur extérieur, car le substrat ou la sous-couche de dépôt, d'une symétrie et taille de maille cristalline (ou amorphe) données, constraint au cours de la croissance le matériau magnétique déposé, d'une autre symétrie et/ou taille de maille. Les contraintes liées au refroidissement ou réchauffement d'une couche après sa fabrication, peuvent également être importantes. Il s'ensuit dans la couche magnétique un champ de déformation statique, généralement non homogène. Son intensité peut atteindre plusieurs pourcents en couches minces. L'énergie d'anisotropie magnétique induite est significative comparé au massif, ou seule une déformation d'une faible fraction de pour-cent est réalisable, car au-delà on assiste à une déformation plastique ou une cassure.

Au premier ordre l'énergie d'anisotropie magnéto-élastique est linéaire avec les différentes déformations :  $K_{mel} \sim B_{mel}\varepsilon$ . Des modèles simplifiés de croissance prédisent une relaxation élastique suivant la loi  $\varepsilon \sim 1/e$ , impliquant donc  $K_{mel} \sim 1/e$ . La variation selon  $e$  est donc similaire à celle de l'anisotropie d'interface. En pratique, les deux sources d'anisotropie sont présentes et se superposent. Il est très délicat de séparer ces deux contributions, si bien qu'en pratique on ne parle souvent que d'anisotropie d'interface, par abus de langage, pour désigner une variation de l'anisotropie selon  $1/e$ , quelle que soit son origine.

### 2.1.3.3 Anisotropie induite par la méthode de dépôt

Le choix ou l'optimisation d'une méthode de dépôt sont d'autres moyens courants pour ajuster l'anisotropie à une valeur différente de celle du massif. Par exemple, l'anisotropie perpendiculaire des composés TbFeCo amorphes utilisés en enregistrement magnéto-optique est induite par le dépôt par pulvérisation cathodique (voir 5.1.3), par une structuration ou une incorporation de gaz. Une anisotropie selon un axe du plan peut être induite par un dépôt sous incidence oblique, par une structuration de la surface de dépôt (stries) comme pour les disques durs, pour les matériaux doux comme le Permalloy ( $Fe_{20}Ni_{80}$ ) par un dépôt sous champ magnétique.

### 2.1.3.4 Variation thermique de l'anisotropie

Dans tous les matériaux l'anisotropie magnétique varie avec la température. En général l'anisotropie s'affaiblit quand on augmente la température, et la décroissance est souvent plus rapide que celle de l'aimantation spontanée. La décroissance thermique de l'aimantation et de l'anisotropie sont exacerbée dans les couches ultramince (et multicouches à couches élémentaires ultramince).

## 2.2 Parois et domaines

Tout comme dans les matériaux massifs, les couches minces et nanostructures peuvent se subdiviser en *domaines magnétiques*, séparés par des *parois de domaines*. Les domaines peuvent résulter de l'histoire magnétique comme une désaimantation en champ alternatif, ou bien être une structure d'équilibre pour minimiser l'énergie dipolaire en bouclant le flux magnétique. Leur étude à l'échelle des nanostructures s'appelle le *micromagnétisme*.

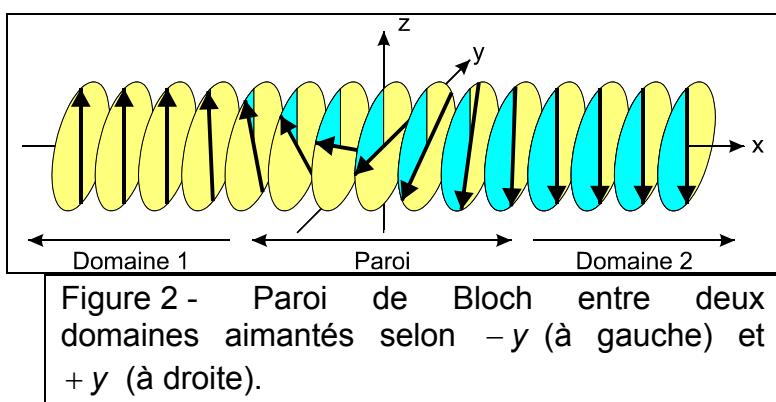
## 2.2.1 Notions de micromagnétisme

Nota: (2) est un excellent ouvrage de référence du micromagnétisme expérimental, analytique et de simulation. (1) est plus spécialisé dans les considérations fondamentales. Des outils de simulation numérique dans le domaine public sont OOMMF (<http://math.nist.gov/oommf/>), GDM2 (<http://physics.ucsd.edu/~drf/pub/>) et SimulMag (<http://math.nist.gov/oommf/contrib/simulmag/>), seul le premier étant toujours maintenu. Des outils commerciaux sont Micromagus (<http://www.micromagus.de/>), LLG Micromagnetics Simulator (<http://llgmicro.home.mindspring.com/>), Euxine Technologies, orienté entre autres vers l'enregistrement magnétique et les vannes de spin (<http://www.euxine.com>), MagFEM3D (<http://www.ramstock.de/>).

À l'échelle macroscopique les propriétés d'aimantation d'un matériau magnétique, notamment des matériaux doux, peuvent être interprétées sur la base d'une susceptibilité :  $\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}$ . Dans cette approche l'aimantation  $\mathbf{M}$  résulte du déséquilibre des populations de domaines magnétiques microscopiques, par rotation de l'aimantation dans les domaines, ou grossissement des domaines globalement orientés dans la direction de  $\mathbf{H}$ . Quand on s'intéresse au détail des domaines et parois, cette approche n'est plus adaptée. Il faut alors tenir compte explicitement et en tout point des quatre termes d'énergie magnétique : l'énergie d'échange  $E_{\text{éch}}$  exprimant la cohésion entre moment atomique voisins, responsable de l'ordre magnétique (voir 2.1.1), les énergies magnétocristalline, Zeeman  $E_Z = -\mu_0 M_s H$  et dipolaire  $E_d$ . Le *micromagnétisme* est la modélisation de ces quatre termes d'énergie dans une approximation de milieu continu. Du fait de la complexité des équations du micromagnétisme, résultant notamment de la non-linéarité et de la non-localité du terme dipolaire, seul un très faible nombre de problèmes sont solubles analytiquement, même en introduisant des approximations. Ce sont généralement des cas limites, qui ne sont pas applicables directement aux problèmes réels. Ils permettent néanmoins de fixer les idées sur les paramètres pertinents. Un exemple de modèle parfaitement soluble est la paroi de Bloch, traitée dans la partie suivante. Pour décrire les détails des systèmes réels, il faut généralement faire appel à la simulation numérique. Des programmes commerciaux sont disponibles pour l'approche macroscopique, par exemple Flux2D et Flux3D, FEMLAB. Les outils de simulation micromagnétique n'ont été développés qu'il y a une dizaine d'années. Des références figurent en nota.

## 2.2.2 Rappels sur les parois de Bloch

Le modèle le plus simple de paroi magnétique est unidimensionnel, c.à.d. considère une chaîne de spins, et ignore champs dipolaire et appliqué. Il schématise deux domaines tridimensionnels séparés par une paroi bidimensionnelle, avec une symétrie de translation dans le plan de la paroi (Figure 2 - ).



L'aimantation reste toujours parallèle à ce plan de la paroi pour réaliser  $\text{div}\mathbf{M} = 0$ . Il suppose une densité d'anisotropie magnétique uniaxiale  $E = K \sin^2 \theta$  avec  $K > 0$  en  $\text{J/m}^3$ , et considère la densité d'énergie d'échange dans la limite des milieux continus  $E_{\text{éch}} = A \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2$ , avec  $A$  en  $\text{J/m}$ . Un calcul prédit la forme de la paroi :

$$(6) \quad \theta(x) = 2 \arctan[\exp(x / \sqrt{A/K})]$$

On trouve dans les ouvrages plusieurs manières de définir la largeur  $\lambda$  d'une paroi. La définition la plus répandue, que nous utiliserons ici, consiste à considérer l'intersection des asymptotes et de la tangente à l'origine de la courbe  $\theta(x)$ , et conduit à  $\lambda_B = \pi \sqrt{A/K}$ . Il est important de vérifier la définition utilisée lorsque l'on utilise des chiffres d'une référence.

**Exemple :** La largeur de paroi  $\lambda_B$  est de l'ordre de 50nm dans le Fer, excède 100nm dans les matériaux très doux, et descend à quelques nanomètres dans les aimants permanents Nd-Fe-B et Sm-Co.

### 2.2.3 Spécificités des parois en couches minces

#### 2.2.3.1 Parois de Bloch en couches minces

Dans une couche mince les parois de Bloch sont modifiées. Considérons une couche présentant deux domaines d'aimantation planaire qui seraient séparés par une paroi de Bloch identique au massif. Cette configuration induirait des charges magnétiques de surface  $M_n$  au-dessus et au-dessous de la paroi, coûteuses en énergie dipolaire. Pour diminuer cette énergie deux zones d'aimantation essentiellement planaire apparaissent spontanément, qui terminent la paroi de Bloch au niveau des surfaces (Figure 4 - a). Ces zones sont appelées domaines de fermeture de Néel. Une paroi de Bloch en couche mince doit être donc décrite par une expression *bidimensionnelle*. Cette description des parois de Bloch est valide dans le cas de couches d'épaisseur supérieure à  $\lambda_B$ . La prise en compte des domaines de fermeture est essentielle pour pouvoir interpréter certaines images des parois magnétiques (voir 2.2.4).

#### 2.2.3.2 Parois de Néel

Pour  $e \lesssim \lambda_B$  les parois sont modifiées encore plus drastiquement, l'aimantation tournant *dans le plan de la couche* (Figure 4 - b,c) ; on parle de *paroi de Néel*. Pour s'en convaincre considérons toujours deux domaines d'aimantation planaire séparés par une paroi, dans un cas de type Bloch, dans l'autre de type Néel. En assimilant la paroi à un ellipsoïde uniformément aimanté, l'énergie dipolaire dans les deux cas est  $K_d \frac{\lambda}{\lambda+e}$  et  $K_d \frac{e}{\lambda+e}$ , respectivement, la transition s'observant donc vers  $e \approx \lambda_B$ . On remarque que les formes d'une paroi de Néel et d'un domaine de fermeture de Néel sont similaires

Le modèle qualitatif ci-dessus a permis de prédire l'existence des parois de Néel, mais ne nous informe pas sur le profil exact de l'aimantation dans une telle paroi. En fait, les champs dipolaires y jouent un rôle important. Des simulations micromagnétiques montrent que la partie centrale de la paroi, appelée cœur, est plus étroite que la prédition de Bloch. Inversement, les parois de Néel dans les matériaux doux sont caractérisées par de longues 'queues', à profil logarithmique, qui

peuvent s'étendre sur plusieurs microns.

### 2.2.3.3 Assemblage complexes de parois

Nous n'avons discuté jusqu'à présent que des parois à  $180^\circ$ . Le coût énergétique des parois en fonction de l'angle est compliqué, et dépend de la forme exacte de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline dans le matériau considéré. Pour les parois de Néel dans des matériaux doux, l'énergie des parois est essentiellement liée au dipolaire qui varie comme le carré des charges mises en jeu, et augmente également avec l'épaisseur. On s'attend donc à une variation quadratique de l'énergie de la paroi en fonction de l'angle total  $\Delta\theta$ . Une conséquence est qu'il est plus avantageux de scinder une paroi de Néel à  $180^\circ$  en un arrangement de plusieurs parois d'angle inférieur, au-delà d'une certaine épaisseur, même si la longueur totale de celles-ci excède de loin la longueur initiale. Expérimentalement on observe souvent un arrangement complexe, appelé en échelle de perroquet (Figure 3 - ). Du fait de l'existence de domaines orientés dans diverses directions, cet arrangement n'apparaît que dans les matériaux doux, dans la gamme d'épaisseur intermédiaire entre les parois de Néel et de Bloch, par exemple 30 – 80 nm dans le Permalloy. Une spécificité des échelles de Perroquet est d'être peu mobiles sous champ magnétique, par rapport à une paroi simple, augmentant la coercitivité et l'hystérosis. Un autre arrangement est les parois dites en zigzag, ou tête-bêche. Dans la plupart des cas les parois magnétiques ne portent pas de charge magnétique nette. Par exemple, dans les couches minces à anisotropie uniaxiale planaire les parois sont en général parallèles à la direction de facile aimantation. Cependant, il peut arriver que deux domaines soient connectés tête-bêche, par exemple du fait des processus de renversement d'aimantation. De manière similaire au cas précédent, une paroi tête-bêche à  $180^\circ$  se scinde spontanément en segments de parois présentant un angle plus faible. Ces segments de parois peuvent être de type Bloch, Néel ou échelles de Perroquet suivant les matériaux et l'épaisseur de la couche. Cette complexité rend l'estimation quantitative de l'angle des zigzags très difficile.

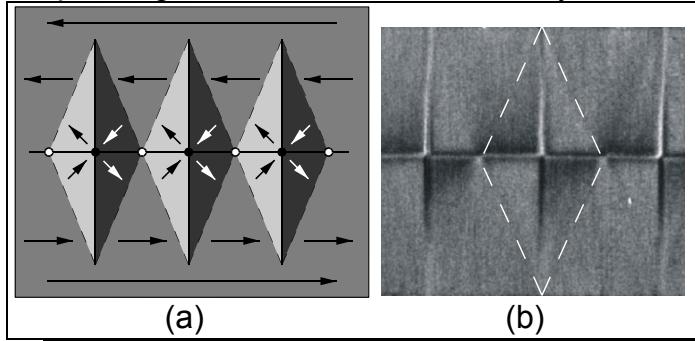


Figure 3 - Paroi en échelle de perroquet, se substituant à une paroi de Néel séparant deux domaines à  $180^\circ$ , ligne médiane horizontale sur l'image : (a) schéma, puis contrastes résultant en MFM (adapté de H. Joosten, J. Magn. Magn. Mater.). Voir Figure 4 - pour les contrastes en imagerie.

### 2.2.3.4 Lignes de Bloch (vortex magnétique)

Dans les échelles de perroquet la composante planaire de l'aimantation doit s'annuler aux intersections de parois, par des arguments de symétrie. En réalité en ces points l'aimantation est perpendiculaire à la couche. La largeur des lignes de Bloch est déterminée par la compétition entre l'énergie dipolaire associée à l'aimantation perpendiculaire locale, et l'énergie d'échange avec l'aimantation planaire environnante. L'analyse dimensionnelle montre que cette largeur est de l'ordre de  $\lambda_{\text{éch}} = \sqrt{A/K_d}$ , une grandeur appelée longueur d'échange.

Exemple :  $\lambda_{\text{éch}} \approx 6 \text{ nm}$  pour le Permalloy. La petitesse de cette valeur fait qu'un vortex est très difficile à observer par les techniques de microscopie magnétique. On caractérise en général les parois qui sont autour.

### Longueurs et grandeurs magnétiques caractéristiques

**Motivation.** Nous avons vu que l'aimantation ne se renverse pas abruptement au niveau des parois magnétiques et des lignes de Bloch, mais en variant continûment sur une certaine distance. Cette distance dépend en particulier des paramètres du matériau, anisotropie, échange et aimantation. À des fins de classification, et parce qu'en pratique de nombreux cas sont expliqués par la compétition de deux termes dominants parmi les trois cités ci-dessus, ceci conduit à la définition de trois longueurs ou grandeurs magnétiques caractéristiques largement utilisées en micromagnétisme, mentionnées ci-dessous. Les situations sous champ magnétique sont ensuite rapidement abordées. L'estimation de la longueur caractéristique  $\lambda$  d'une situation est essentielle pour prévoir grossièrement le comportement d'un système, car c'est sa comparaison à une dimension  $L$  du système (épaisseur, taille latérale pour une nanostructure) qui détermine l'apparition de phénomènes micromagnétiques par opposition à un comportement massif. Les comportements typiques de 'nanostructures' apparaissent dans la gamme  $1 \leq L / \lambda \leq 100$ .

La **largeur de paroi (de Bloch)**  $\lambda_B = \pi \sqrt{A/K}$  résulte de la compétition entre l'échange  $A$  (en  $\text{J/m}$ ) et l'anisotropie  $K$  (en  $\text{J/m}^3$ ). Nous avons vu (2.2.2) que plusieurs définitions existent, variant entre elles d'un facteur numérique. Cette longueur est pertinente pour décrire les parois dans les couches épaisses. Elle est également adéquate pour les parois dans les couches ultramince à aimantation planaire ou perpendiculaire, car alors les champs dipolaires redeviennent négligeables.

La **longueur d'échange**  $\lambda_{\text{éch}} = \sqrt{A/K_d}$  (avec  $K_d = \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2$ ) apparaît lorsque rentrent en compétition l'échange et l'énergie dipolaire, comme pour le cas des lignes de Bloch, le cœur de parois de Néel de matériaux doux, les irrégularités géométriques de bord (arêtes, rugosité) etc.

**Facteur de qualité.** Une troisième situation idéale est le cas de la compétition de l'anisotropie magnétocrystalline  $K_{\text{mc}}$  et l'énergie dipolaire  $K_d$ . Ces deux quantités étant de même dimension, ceci ne définit pas une longueur, mais un nombre appelé *facteur de qualité*,  $Q = K_{\text{mc}} / K_d$ . Dans le cas de couches à anisotropie perpendiculaire  $Q < 1$  favorise l'apparition de domaines, même à la rémanence, alors que  $Q > 1$  favorise une rémanence forte.

**Situations sous champ magnétique.** L'application d'un champ magnétique extérieur modifie les configurations micromagnétiques, et donc les longueurs caractéristiques d'un problème donné. Plusieurs expressions de longueurs caractéristiques peuvent apparaître par combinaison de  $\mu_0 H$  avec une ou deux autres grandeurs, suivant le problème considéré. Donnons simplement quelques exemples : une paroi d'un matériau doux bloquée sur une inclusion dure fait intervenir la longueur  $\sqrt{A / \mu_0 M_s H}$ , ou  $\sqrt{A / \sqrt{\mu_0 M_s H K}}$  pour un matériau possédant une anisotropie non négligeable.

#### 2.2.3.5 Parois des couches à aimantation perpendiculaire

Les parois de couches à aimantation perpendiculaire sont généralement bien

décrivées par une paroi de type Bloch, l'aimantation étant *planaire* dans la paroi (Figure 4 - d). Aux fortes épaisseurs une structure particulière peut exister aux surfaces, comme pour les domaines de fermeture de Néel.

## 2.2.4 Imagerie magnétique des domaines et parois

Nous avons vu ci-dessus qu'une grande variété de domaines et parois existe dans les couches minces et nanostructures. En pratique, au-delà d'une analyse analytique préalable et toujours instructive, le recours à une méthode d'imagerie magnétique est souhaitable pour déterminer le type de paroi et la forme des domaines d'un système. Deux techniques d'imagerie sont aisées et bien adaptées à une caractérisation des couches et nanostructures. Le microscope à force magnétique (MFM) est un microscope à force atomique (AFM, anglais) utilisant une pointe recouverte de

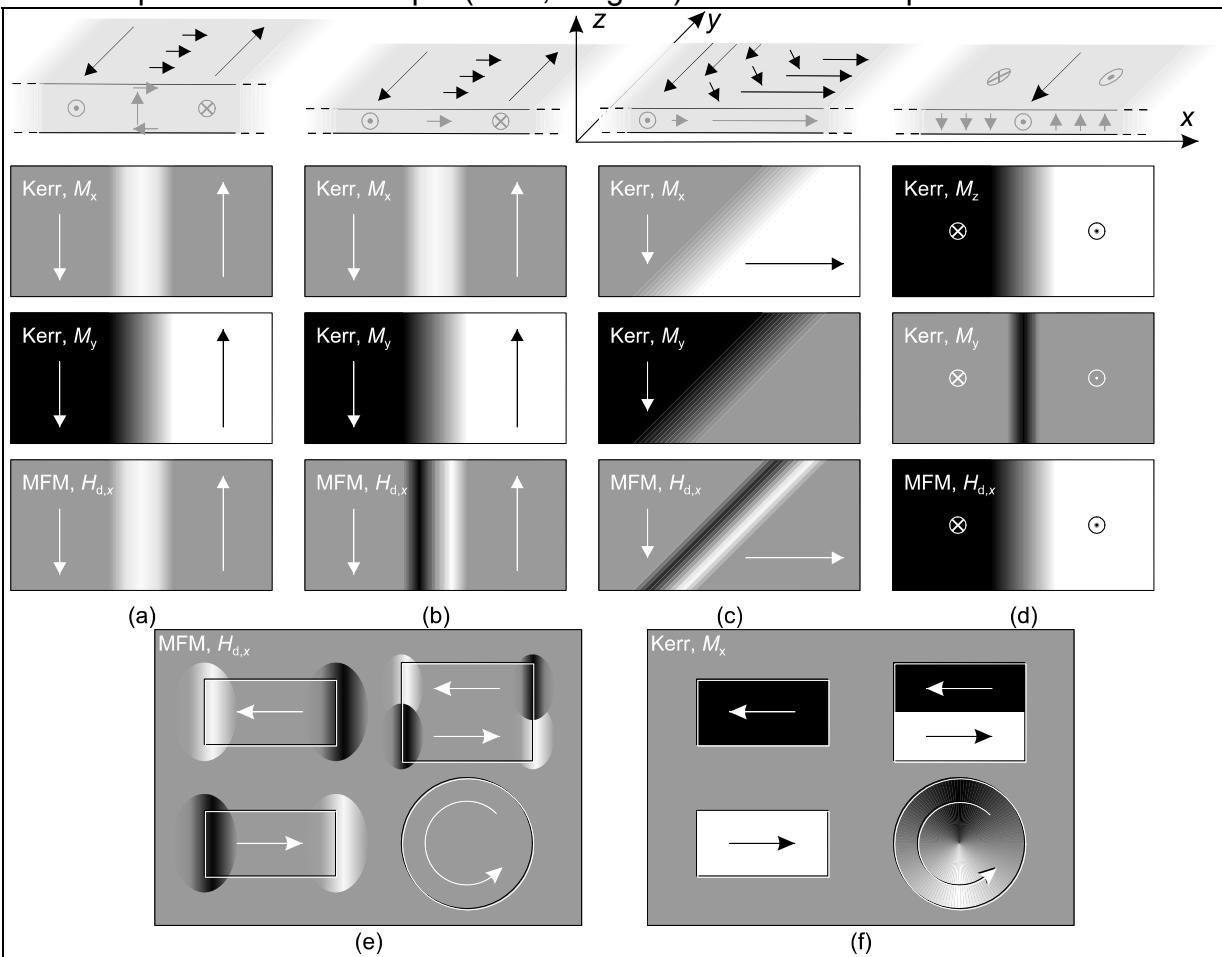


Figure 4 - Exemple de parois dans les couches minces (en haut : vue de la coupe et du dessus), et du contraste attendu pour la microscopie Kerr (selon  $M_x$ ,  $M_y$  ou  $M_z$ ) et MFM (pointe aimantée suivant z). (a) Parois de Bloch à fermeture de Néel (b) Paroi de Néel à  $180^\circ$  (c) Paroi de Néel à  $90^\circ$  (d) Paroi à  $180^\circ$  d'une couche à aimantation perpendiculaire. (e-f) Contraste attendu pour des nanostructures, voir partie 3. Voir également Figure 3 - .

quelques dizaines de nanomètres de matériau magnétique. Le MFM sonde les champs dipolaires issus de l'échantillon (il s'agit donc d'une méthode indirecte, et potentiellement perturbative). Sa résolution est de 50 nm environ. La microscopie Kerr est une microscopie optique tirant parti de la modification de polarisation des ondes lumineuses réfléchies sur une surface magnétique (rotation et ellipticité). Elle

permet de mesurer directement les composantes planaire (effet Kerr transverse ou longitudinal) ou perpendiculaire (effet Kerr polaire) de l'aimantation des quelques dizaines de nanomètres de la surface. Elle est particulièrement adaptée aux surfaces lisses, et présente une résolution ultime de l'ordre de la longueur d'onde utilisée, quelques centaines de nanomètres. Pour permettre au lecteur d'analyser les images obtenues, pour les techniques de microscopie les plus courantes, nous examinons ici dans quelques cas d'école à quel contraste donne lieu chaque type de paroi.

## 2.3 Processus de renversement de l'aimantation

### Le modèle de rotation cohérente

Le modèle de *retournement cohérent de l'aimantation* traite le renversement d'aimantation d'un système supposé uniformément aimanté, également appelé *macrospin*. L'intérêt de ce modèle est de se résoudre analytiquement, mais il n'est applicable tel quel qu'aux nanoparticules de taille comparable ou inférieure aux longueurs magnétiques caractéristiques, typiquement 10 nm, pour garantir l'aimantation uniforme. En revanche, pour les systèmes massifs et les couches minces la coercitivité réelle peut être jusqu'à un ou deux ordres de grandeurs inférieure à la prédiction du modèle. Néanmoins, quand il est appliqué à des valeurs de volume et d'anisotropie réfléchis (voir 2.3.2 : notions de volumes de nucléation, piégeage sur des défauts localisés durs ou nucléation sur des défauts doux), il donne des indications sur les grandes tendances des processus de renversement d'aimantation (température, dynamique etc.). C'est à ce titre que nous l'étudions ici. Pour un système de volume  $V$  on notera  $\kappa = KV$ , avec  $K > 0$ . L'énergie d'anisotropie totale, supposée du second ordre, et  $M = M_s V$  son moment. Son énergie dans un champ extérieur  $H$  s'écrit :

$$(7) \quad \mathcal{E}(\theta) = \kappa \sin^2 \theta + \mu_0 M H \cos \theta$$

Dans cette notation  $\theta = 0, \pi$  est la direction de facile aimantation, la direction initiale d'aimantation est  $\theta = 0$ , et  $H$  est appliqué selon  $\theta = \pi$  en étant compté positivement. On notera  $H_a = 2K / \mu_0 M_s$  dans la suite. Quelques courbes  $\mathcal{E}(\theta)$  sont représentées Figure 5 - b. Un minimum représente un état d'équilibre ; un maximum représente une barrière d'énergie empêchant un renversement d'aimantation. On trouve que tant que  $H < H_a$ ,  $\theta = 0$  reste une position d'équilibre stable : si on néglige l'agitation thermique l'aimantation n'est pas renversée. Pour  $H = H_a$  le minimum disparaît, provoquant le renversement d'aimantation ;  $H_a$  est donc le champ de *renversement*,  $H_r$ . Le modèle peut être généralisé pour une direction  $\theta_H$  de  $H$  quelconque ( $\theta_H = \pi$  ici). La courbe de  $H_r(\theta_H)$ , appelée *astroïde de Stoner-Wohlfarth*, est représentée en Figure 5 - a. Cette dépendance angulaire est exploitée pratiquement, voir 5.1.4. Signalons que le champ coercif  $H_c$ , défini par  $\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_c = 0$ , est la seule quantité mesurée pour un matériau massif, caractérisé par un grand nombre de petits renversements d'aimantation non détectables. Pour un macrospin  $H_c$  est peu pertinent ; c'est le champ de renversement  $H_r$  qui a une signification physique, et qui est représenté sur l'astroïde. C'est ce qui explique la surprenante similarité entre les directions facile et difficile, sur cette courbe. Ceci dit, proche des directions faciles  $H_r = H_c$  puisque les cycles sont à peu près carrés (Figure 5 - a).

Cette description est idéalisée dans le cas d'une température nulle. En réalité, pour

$H < H_a$  l'agitation thermique peut aider à renverser l'aimantation, en permettant de franchir la barrière d'énergie  $\Delta\mathcal{E}$  (Figure 5 - b). On calcule :

$$(8) \quad \Delta\mathcal{E} = \kappa(1 - H/H_a)^2.$$

On peut estimer le temps moyen au bout duquel la barrière est franchie, appelé *temps d'attente* :  $\tau = \tau_0 \exp(\Delta\mathcal{E}/k_B T)$ , où  $\tau_0 \sim 10^{-10}$  s. À l'aide de cette relation, et en inversant l'équation (8) pour déterminer le de renversement, on déduit une information concrète : pour une technique de mesure qui nécessite un temps  $\tau$  pour réaliser une acquisition, le champ coercitif varie suivant la loi

$$(9) \quad H_c(T, \tau) = H_c(T = 0 \text{ K}) \left( 1 - \sqrt{\frac{k_B T}{KV} \ln \frac{\tau}{\tau_0}} \right),$$

où  $H_c(T = 0 \text{ K})$  est le champ coercitif dans la limite des très basses températures. Notons que dans le strict cadre du modèle  $H_c(T = 0 \text{ K}) = H_a$  et  $V$  est le volume total du système. Ceci n'est applicable que pour les nanoparticules les plus petites, voir 3.2.4. Dans la plupart des autres cas  $H_c(T = 0 \text{ K})$  doit être mesuré ou extrapolé, et  $V$  est un volume de taille comparable aux longueurs magnétiques caractéristiques vues précédemment, et bien plus petit que le volume total du système. Cette distinction est essentielle pour appliquer correctement la formule (9).

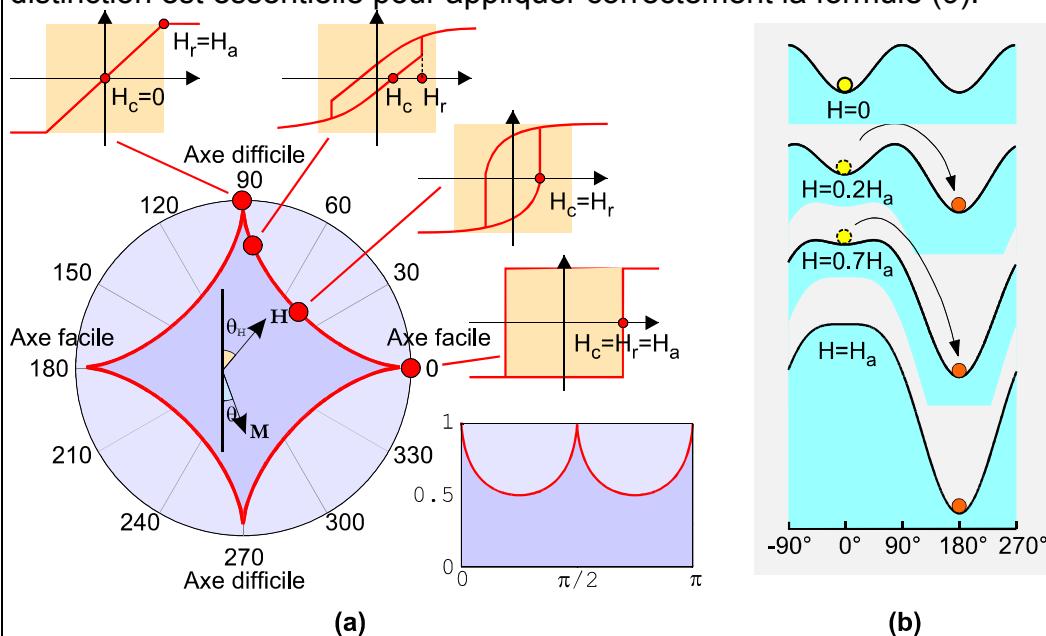


Figure 5 - Modèle de rotation cohérente. (a) Champ de renversement en fonction de l'angle  $\theta_H$  du champ avec la direction de facile aimantation, en représentation polaire (on parle de l'*astroïde* de Stoner-Wohlfarth) et cartésienne. Les cycles d'aimantation sont schématisés pour quelques angles. (b) Profils d'énergie magnétique  $\Delta\mathcal{E}(\theta)$  pour quelques valeurs de champ appliqué à  $180^\circ$ , pour renverser l'aimantation initialement selon  $\theta_H$ .

### 2.3.1 Cycles d'aimantation

Le modèle le plus simple de renversement de l'aimantation est le modèle de rotation cohérente, décrit en encart. Cependant, nous y soulignons qu'il ne peut être appliqué

qu'aux nanoparticules les plus petites, typiquement 10 nm. Le cycle d'aimantation est alors carré dans la direction de facile (Figure 5 - a) aimantation. Le cas des couches minces, très grandes latéralement, est similaire aux matériaux massifs : le renversement d'aimantation ne peut être décrit que phénoménologiquement, selon des modèles dépendant du type de matériau. Les processus en jeu sont la *nucléation* localisée de domaines renversés, et leur extension par la *propagation* des parois magnétiques les délimitant. Le détail microscopique du renversement d'aimantation dans les couches minces est mieux compris quantitativement que pour les matériaux massifs grâce à l'utilisation de microscopies magnétiques. Les techniques utilisées pour contrôler la coercitivité sont cependant les mêmes : contrôle de l'anisotropie magnétocristalline d'une part, de la microstructure d'autre part. Nous renvoyons le lecteur sur les articles TI Geoffroy (autre ?), pour le traitement détaillé de modèles. Seul les grandes lignes et les aspects spécifiques aux couches minces figurent ici.

**Les couches très douces.** La condition pour qu'une couche soit magnétiquement douce est une anisotropie magnétocristalline et une magnétostriction faibles. De plus, le renversement d'aimantation, une fois initié dans un petit volume, ne doit pas être entravé par la microstructure. C'est pourquoi les couches les plus douces sont soit nanocrystallines, soit amorphes. De tels matériaux sont délicats à réaliser à l'état massif car ils nécessitent une trempe thermique pour éviter la formation de cristaux micrométriques. On peut les obtenir par des procédés particuliers comme la trempe sur roue (Ex : FeCoSiB ultradoux) La fabrication de couches minces amorphes ou nanocrystallisées est plus aisée car, du fait de la croissance progressive à partir du substrat, il est possible de conserver les mêmes conditions de température à tous les stades d'épaisseur de la couche, contrairement à la trempe. Concrètement, une couche amorphe est souvent obtenue par croissance à basse température ( $T < 0^\circ\text{C}$ ) ; une couche nanocrystallisée est obtenue par recuit d'une couche amorphe, contrôlé en température comme en durée. Les spécificités magnétiques des couches nanocrystallisées sont traitées au 4.1.1. Les applications des couches douces sont les guides de flux ou les blindages, les capteurs.

**Couches dures.** Tout comme dans les matériaux durs massifs, utilisés comme aimants permanent, une forte coercitivité  $H_c$  en couche mince nécessite d'une part un matériau d'anisotropie élevée, d'autre part une inhibition de la nucléation des domaines renversés et/ou de la propagation des parois. Pratiquement, on défavorise la nucléation en utilisant des grains fins, c'est à dire dont la taille est inférieure ou ne dépasse guère les longueurs magnétiques caractéristiques. La nucléation s'assimile alors dans le grain fin au renversement cohérent de l'aimantation, décrit par le modèle de SW, impliquant donc une coercitivité élevée. De même, on inhibe la propagation du renversement grâce aux joints de grain. Jusqu'à présent ce sont les alliages à base de Co qui ont été les plus utilisés pour les couches dures, avec une anisotropie cependant bien inférieure à celle des aimants permanents massifs. Citons les alliages CoCr, CoPtCr, CoPtCrTa, CoPtCrB déposés par pulvérisation et utilisés comme media de disques durs (5.1.2). Les grains, composés majoritairement de Co, sont séparés par des joints peu ou non magnétiques, riches en Cr. Le rôle du Ta est de promouvoir la diffusion du Cr aux joints de grains, tandis que le Pt renforce l'anisotropie de grains, et B l'aimantation spontanée. Les grains ont leur direction d'aimantation imposée par une texture des grains, généralement dans le plan. La couche peut alors présenter une anisotropie uniaxiale du fait de l'alignement grossier des grains dans une direction, imposée par des sillons induits par polissage circulaire préalable de la surface de dépôt. Chaque bit d'information est inscrit sur une

assemblée de grains. Pour minimiser le rapport signal sur bruit il est nécessaire de limiter la dispersion des grains en taille et en coercitivité. Notons qu'une dispersion de coercitivité inévitable est liée aux champs dipolaires entre les grains.

Exemple : En 2005 le diamètre d'un grain est de l'ordre de 10 nm, la taille d'un bit de  $200 \times 30$  nm, pour une épaisseur de 15 – 20 nm nanomètres.

Pour les couches à anisotropie perpendiculaire on utilise des alliages ou des multicouches à base de CoPt, qui présentent une forte anisotropie d'interface (voir 2.1.3.1). Ces multicouches sont utilisées dans le media de disques magnéto-optiques (voir 5.1.3), et sont en passe de l'être dans les nouvelles générations de disques durs, qui seront prochainement à aimantation perpendiculaire. Nous verrons que l'utilisation de grains de plus en plus fins pose le problème de la stabilité thermique de l'information stockée (voir 3.2.4). Il est alors nécessaire de compenser la diminution de volume  $V$  par une augmentation de l'anisotropie [éq.(9)]. Ainsi l'optimisation en couches minces de matériaux de plus grande anisotropie est aujourd'hui activement menée dans les laboratoires académiques et industriels, par exemple avec les alliages  $L1_0$  de type FePt (Tableau 1 - ).

Un cycle d'hystérésis de couches granulaires présente des spécificités. En premier lieu, ce cycle présente toujours un renversement d'aimantation distribué dans une certaine gamme de champs. La dispersion de propriété de grains, mais également les interactions dipolaires inter-grains, influencent cette largeur. Deuxièmement, l'aimantation rémanente  $M_r$  est inférieure à un car l'aimantation pointe dans des directions différentes dans les différents grains. Supposons le cas simple d'une anisotropie uniaxiale. Pour des grains parfaitement orientés (couche texturée) on trouve  $M_r = 1$  dans la direction facile ; c'est le cas des couches à aimantation perpendiculaire. Ceci explique un des attraits des couches à aimantation perpendiculaire pour l'enregistrement magnétique, car elles permettent d'une part de maximiser le signal de mesure, d'autre part de diminuer le bruit. Les couches à aimantation planaire sont quant à elles souvent caractérisées par une distribution isotrope *dans le plan*. On a alors  $M_r = 2/\pi \sim 0.64$ . Enfin, pour une orientation aléatoire en 3D, on retrouve  $M_r = 0.5$  comme dans les massifs. Notons que dès que certains grains ont un axe facile hors du plan, ces chiffres sont modifiés par les champs démagnétisants.

### 2.3.2 Nucléation et activation thermique

Dans cette partie modélisons le renversement d'aimantation. Ceci nous permet de prédire la tendance de variation du champ coercif avec la température et la dynamique d'application. Les comportements décrits ici s'appliqueront également à la plupart des nanostructures.

#### 2.3.2.1 Volumes de nucléation

Dans les couches minces le retournement d'aimantation s'initie dans un petit volume qui renverse son aimantation en premier, comme dans les matériaux massifs. Ce volume est appelé *volume d'activation* ou encore *volume de nucléation*. Sa taille est comparable à celle d'une paroi magnétique. Ce volume est suffisamment petit pour être correctement décrit par le modèle de rotation cohérente, le volume considéré étant le petit volume dit de nucléation. Une fois que le volume de nucléation est créé, avec une aimantation renversée, la zone renversée peut gagner le reste du système par la propagation de parois magnétiques. Le champ de nucléation du petit volume

détermine donc le champ coercitif de la couche, que l'on peut mesurer par magnétométrie. Cette description est valide si la couche ne présente pas de microstructure forte bloquant significativement le déplacement des parois. Dans le cas contraire il faut mettre en œuvre des modèles spécifiques, comme dans certains aimants permanents (Réf. TI Geoffroy). Enfin, si les parois ne peuvent pas se propager du tout, comme dans le cas de matériaux granulaires évoqués ci-dessous pour l'enregistrement magnétique, alors il faut considérer chaque grain comme un système magnétique à part entière, dans lequel se déroulera un événement de nucléation. Dans la pratique plusieurs événements de nucléation peuvent se produire quasiment simultanément en plusieurs endroits du système.

### 2.3.2.2 Variation thermique de la coercitivité

Appliquons le modèle de retournement cohérent à un volume de nucléation. L'équation (9) montre que  $H_c$  décroît avec la température, très rapidement à basse température, puis quasiment linéairement si l'on considère une gamme de température supérieure et restreinte. Ceci implique que si l'on doit réaliser un dispositif fonctionnant à température variable, haute ou basse, il faudra considérer sur la gamme de travail la variation de champ coercitif. Si on néglige la variation thermique des constantes d'anisotropie, la pente de la courbe  $H_c(\sqrt{T})$  permet de déterminer la taille  $V_n$  du volume de nucléation.

Enfin, on constate que  $H_c$  s'annule au-delà d'une certaine température, qui peut être très inférieure à la température de Curie. On dit alors que le système est dans un état *superparamagnétique*, qui sera étudié plus loin car il concerne essentiellement les nanostructures.

### 2.3.2.3 Cœrcitivités quasi-statique et dynamique

$H_c$  est également affecté par le temps  $\tau$  de réalisation d'un processus d'aimantation influence également  $H_c$ . Ce temps peut aller de plusieurs minutes à la nanoseconde selon les applications. L'équation (9) montre que  $H_c$  augmente pour les processus rapides. Pour compenser cette diminution des effets thermiques il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique plus important pour déclencher le renversement d'aimantation.

Inversement, l'utilisation de la dépendance  $H_c(\tau)$  est un moyen de déterminer  $V_n$ , alternatif à l'étude en température. Notons que du fait de la dépendance logarithmique de  $H_c$  avec  $\tau$ , la connaissance précise du temps d'application du champ n'est pas cruciale.

## 3 Propriétés des nanostructures simples

On appelle *nanostructure* un système dont la dimensionnalité est encore réduite par rapport à une couche mince, c'est à dire dont les dimensions sont limitées dans au moins deux directions de l'espace. On peut les produire par des procédés de lithographie, ou par voie chimique ou physique (nanoparticules).

Les mêmes phénomènes physiques à l'œuvre dans les nanostructures sont les mêmes que pour les couches minces, mais suivant une géométrie différente. Cependant, il n'est pas possible de contrôler la taille latérale de nanostructures jusqu'au nanomètre avec les technologies actuelles. Ainsi les effets qui ne se révèlent qu'à ces dimensions, tels que l'anisotropie magnétique de surface ou la

diminution de la température de Curie, ne se rencontrent pas dans la pratique. Le comportement spécifique des nanostructures est lié essentiellement aux effets d'énergie dipolaire pour les configurations d'aimantation, et aux effets de volume fini. Les effets nouveaux, résultant de l'utilisation de systèmes composites (couches couplées, matériaux granulaires etc.), qui apportent une complexité encore supérieure aux nanostructures, font l'objet de la partie suivante.

### 3.1 État fondamental micromagnétique

#### 3.1.1 Plots minces à aimantation planaire

##### 3.1.1.1 Matériau doux sous champ nul -- Le modèle de Van den Berg

Une nanostructure tend à former des domaines magnétiques pour diminuer les charges magnétiques et donc son énergie dipolaire. La forme des domaines est décrite par la construction dite de *Van den Berg*. Les hypothèses du modèle sont les suivantes: 1. le matériau est parfaitement doux 2. l'aimantation est planaire

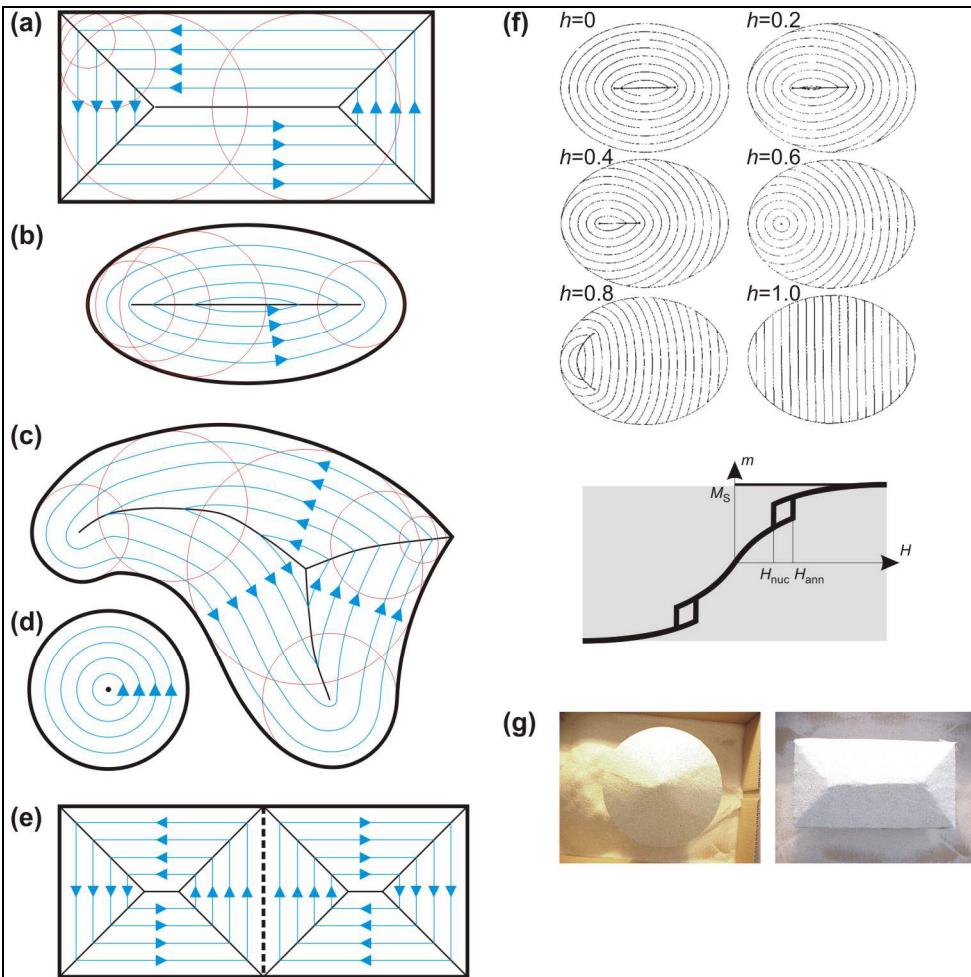


Figure 6 - Quelques exemples de constructions de Van den Berg simples (a-d), d'ordre supérieur (e). (f) Exemple de construction de Bryant et Suhl pour une ellipse, le champ appliqué transverse étant normalisé à  $N_y M_s$  (d'après Bryant et Suhl). Cycle d'hystéresis schématique d'un multidomaine. L'hystéresis est d'autant plus grande que l'objet est petit (g) Construction des tas de sable pour (d) et (a).

3. l'épaisseur du plot est très faible 4. les parois sont très fines et ne portent pas d'énergie. En pratique ces conditions peuvent être considérées comme remplies de manière satisfaisante pour un matériau doux quand l'épaisseur est faible devant la longueur d'échange, et les dimensions latérales très grandes par rapport aux largeurs de parois.

Le théorème de Van den Berg s'énonce ainsi: *Le plot est divisé en domaines, séparés par des parois dont le lieu est l'ensemble des centres des cercles inscrits (intérieurs et tangents) en au moins deux points au contour du plot. En tout point en-dehors des parois, l'aimantation est perpendiculaire aux normales issues des bords.* Cette construction géométrique permet d'annuler les charges de surface  $\mathbf{M} \cdot \mathbf{n}$  et de volume  $-\operatorname{div}(\mathbf{M}) = 0$ .

Quelques exemples de constructions sont présentés sur la Figure 6 - . Ces états, formés de plusieurs domaines et parois, sont appelés états multidomaines. Notons que l'angle de la paroi n'est pas nécessairement constant le long de celle-ci. Dans le cas d'un plot parfaitement circulaire, on trouve un vortex au centre Figure 6 - d.

On remarque également qu'il n'y a pas unicité de la construction : la configuration magnétique d'un plot divisé par l'esprit en deux parties, auxquelles on applique séparément le théorème, permet d'annuler simultanément charges de surface et de volume (Figure 6 - e). Ce type de configuration est effectivement observé expérimentalement. En pratique, la configuration obtenue à la rémanence dépend du cycle d'hystérésis décrit précédemment (histoire magnétique).

Pour imaginer rapidement le résultat de la construction de Van den Berg, présentons l'analogie avec les arêtes d'un tas de sable réalisé sur un support de forme celle du plot (Figure 6 - g). Cette analogie est expliquée par la constance des pentes du tas, les courbes de niveaux révélant la direction d'aimantation locale. Un aspect intéressant l'utilisation d'un éclairage rasant pour estimer le contraste attendu des microscopies révélant la direction planaire de l'aimantation, comme l'effet Kerr longitudinal ou transverse.

### 3.1.1.2 Matériau doux sous champ extérieur -- Le modèle de Bryant et Suhl

Un champ magnétique extérieur planaire  $\mathbf{H}$  a deux effets. D'une part la proportion de domaines colinéaires à  $\mathbf{H}$  augmente par rapport aux domaines antiparallèles. D'autre part l'aimantation des domaines qui forment un angle avec  $\mathbf{H}$ , tourne vers celui-ci. Malheureusement la solution, décrite par Bryant et Suhl, n'est pas aussi simple que celle de Van den Berg, car elle repose sur la résolution d'équations différentielles couplées. Dans ce modèle, le seul aspect trivial qui est conservé de la résolution de Van den Berg, est que l'aimantation reste parallèle aux bords. La Figure 6 - f donne

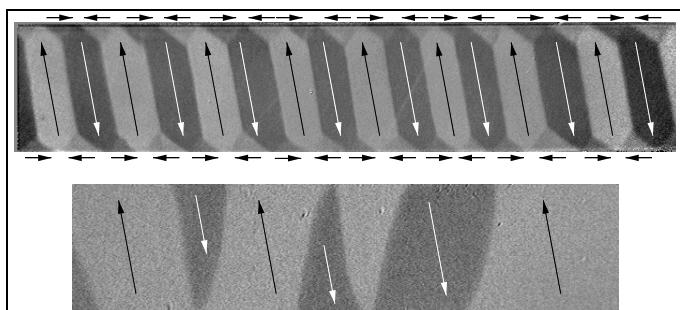


Figure 7 - Bandes de  $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$  de largeur 50 µm (CEA-LETI), imagées par effet Kerr longitudinal. Haut : monocouche d'épaisseur 100nm. En présence d'une anisotropie magnétocristalline (mc), même faible, les domaines à fermeture de flux favorisent la direction de facile aimantation mc (ici, légèrement en biais). Bas : bande bi-couche 2x100nm séparées par un matériau non magnétique ; le flux se boucle cette fois verticalement en bord de bande, voir 4.2.4.

quelques exemples de résolution.

### 3.1.1.3 Influence d'une faible anisotropie

Si le matériau présente une anisotropie magnétocristalline entre différents axes du plan, alors certaines orientations de domaines sont favorisées par rapport à d'autres. Dans le cas où l'anisotropie reste modérée, la configuration est peu modifiée par rapport au modèle de Van den Berg. Par exemple, dans le cas d'un carré avec l'anisotropie parallèle à un bord, on observe une construction d'ordre supérieur, qui favorise les domaines colinéaires à l'axe de facile aimantation, diminuant la proportion de domaines transverses. Une bande présentant une anisotropie transverse (selon la petite longueur) se subdivise en domaines transverses, de forme hexagonale. Notons que pour une anisotropie modérée l'aimantation reste toujours parallèle au bord du plot, grâce à des domaines triangulaires, dits de fermeture (Figure 7 - ). Plus l'anisotropie est élevée, plus les domaines de fermeture induisent un coût énergétique important. Ceci favorise la subdivision du plot en un plus grand nombre de domaines colinéaires, pour diminuer la surface des domaines de fermeture.

### 3.1.1.4 Diagramme des états mono- et multi-domaines

Pour des plots très petits, typiquement au-dessous du micron, la construction de Van den Berg n'est plus applicable. Le coût énergétique total des parois  $\mathcal{E}_W$  grandit *en valeur relative* par rapport au gain d'énergie dipolaire  $\Delta\mathcal{E}_d$  associé à la formation d'un état multidomaines. Lorsque  $\mathcal{E}_W \gtrsim \Delta\mathcal{E}_d$  l'état le plus favorable est un état sans paroi, où l'aimantation est quasiment uniforme. Cet état est appelé état *monodomaine*, ou *macrospin*. Dans la plupart des cas il n'existe pas de loi analytique permettant d'estimer la taille critique d'un système, séparant les états multidomaines du macrospin. Il est nécessaire de faire appel à des approximations, des calculs analytiques terminés par des résolutions numériques, voire à des simulations micromagnétiques. Pour les plots plats, de dimensions latérales comparables dans les deux dimensions, et constitués de matériau doux, la taille latérale critique est à peu près inversement proportionnelle à l'épaisseur. L'introduction d'une anisotropie magnétocristalline ou de forme favorise l'état monodomaine, par rapport à cette courbe (Figure 8 - ). Les calculs sont en très bon accord avec l'expérience.

### 3.1.1.5 Anisotropie magnétique des états monodomaines

Dans les nanostructures monodomaines, à l'anisotropie magnétocristalline  $K_{mc}$  s'ajoute l'*anisotropie dipolaire*  $K_d$ , dite également *de forme* (TI Geoffroy). Pour les applications requérant une anisotropie modérée (mémoires MRAMs, capteurs,

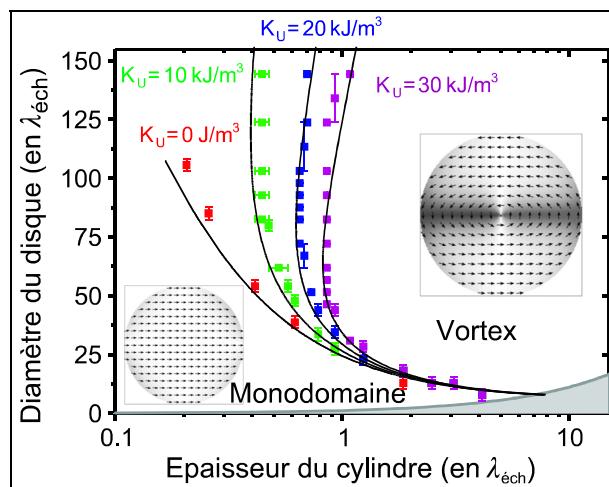


Figure 8 - Exemple de diagramme des états monodomaine et vortex pour un plot cylindrique à base circulaire, en fonction du diamètre, de la hauteur, et de l'intensité d'une anisotropie uniaxiale plane (différentes couleurs). Adapté de Jubert et coll., Phys. Rev. B 70, 144402 (2004).

têtes de lecture) il est commode d'utiliser des éléments monodomains dont l'anisotropie est contrôlée par la forme de l'élément, plutôt qu'un matériau magnétiquement anisotrope. On évite ainsi la fluctuation statistique de direction d'anisotropie dans les matériaux polycristallins, et il est possible de varier continûment  $K_d$  en jouant sur la géométrie.

$K_d$  est calculée comme l'énergie dipolaire d'un état strictement uniformément aimanté. On trouve souvent en exemple les plaques et cylindres infinis, et les ellipsoïdes, car ils possèdent un champ démagnétisant uniforme pour une configuration d'aimantation uniforme, orientée dans une direction de haute symétrie. En revanche, pour toutes les autres formes le champ démagnétisant créé par une aimantation uniforme n'est pas homogène en direction ni en amplitude, induisant une déformation de la configuration d'aimantation par rapport à l'état uniformément aimanté. Ceci est notamment le cas de tous les nanostructures plates d'intérêt technologique, que l'on obtient par lithographie de couches minces : parallélépipèdes, disques, ellipses (Figure 9 - ).

Exemple : Il ne faut pas confondre un *ellipsoïde*, dont la surface est tridimensionnelle et qui possède un champ démagnétisant strictement uniforme, avec un plot plat dont le contour est une *ellipse*, et qui possède un champ démagnétisant non uniforme.

Dans tous les cas on définit le *coefficient de champ démagnétisant* d'une nanostructure dans une direction  $i$  par la relation  $K_d = N_i \times \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2$ , et l'on a toujours :  $N_x + N_y + N_z = 1$ . Il est erroné d'estimer les  $N_i$  d'éléments plats en les

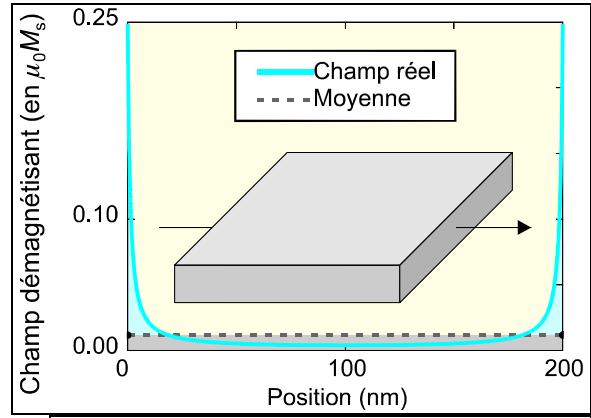


Figure 9 - Non-uniformité du champ démagnétisant dans un plot plat, illustrée sur l'axe d'un carré de Fe d'épaisseur 2.5 nm et de côté 200 nm (hauteur exagérée pour la clarté sur le schéma). La moyenne correspond au coefficient de champ démagnétisant :  $\langle H_d \rangle = -N_x M_s$ .

Exemple : Il ne faut pas confondre un *ellipsoïde*, dont la surface est tridimensionnelle et qui possède un champ démagnétisant strictement uniforme, avec un plot plat dont le contour est une *ellipse*, et qui possède un champ démagnétisant non uniforme.

Dans tous les cas on définit le *coefficient de champ démagnétisant* d'une nanostructure dans une direction  $i$  par la relation  $K_d = N_i \times \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2$ , et l'on a toujours :  $N_x + N_y + N_z = 1$ . Il est erroné d'estimer les  $N_i$  d'éléments plats en les

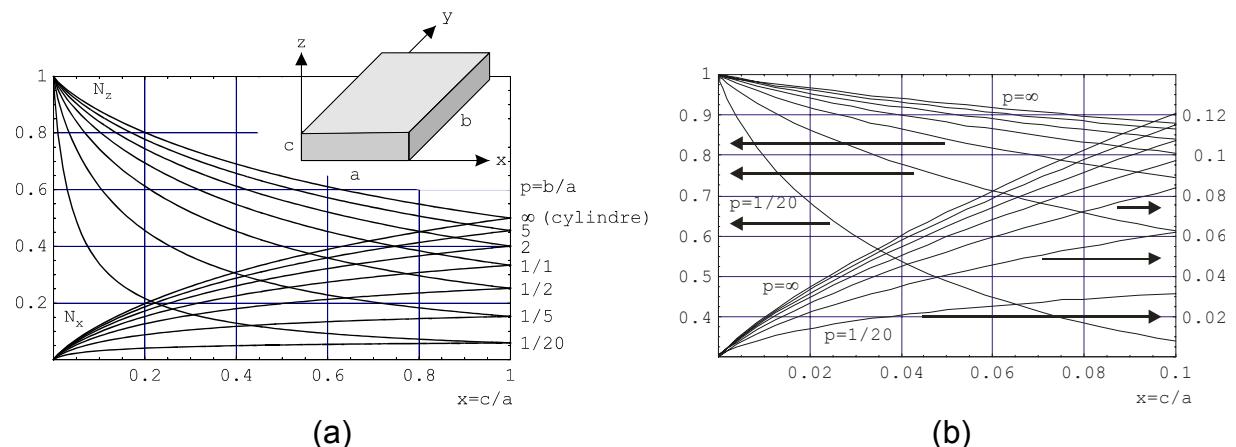


Figure 10 - Tabulation de coefficients de champ démagnétisant de plots rectangulaires plats de différents rapports d'aspect, latéral  $p = b / a$  et d'épaisseur  $x = c / a$  (toutes les géométries sont décrites, même les cylindres verticaux, par permutation des trois axes). (b) est un zoom de (a), adapté pour les plots très minces.

assimilant à des ellipsoïdes de même rapport d'aspect (approximation souvent utilisée car les  $N_i$  des derniers s'expriment plus simplement). La Figure 10 - montre les  $N_i$  pour toutes les géométries d'éléments plats parallélépipédiques. Pour les géométries plus compliquées, le recours à des simulations micromagnétiques est préférable.

### 3.1.1.6 Détail des états monodomains

Les états que nous avons qualifiés de *monodomains* ci-dessus ne sont en réalité jamais parfaitement uniformément aimantés, en particulier pour des éléments plats, puisque le champ démagnétisant est inhomogène dans tout plot plat, et peut être significatif en bord de plot (Figure 9 - ), induisant une rotation locale de l'aimantation ; on parle alors de *domaine de bord*. Suivant l'orientation des domaines de bord, on parle d'état C ou d'état S (Figure 11 - ). Lorsque la taille de plot devient de l'ordre de grandeur de la largeur de paroi, l'aimantation devient quasiment uniforme.

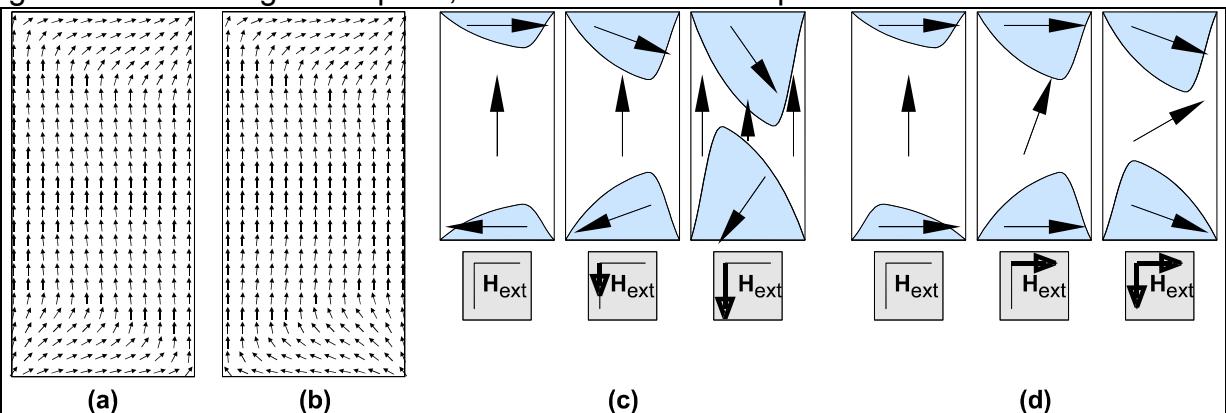


Figure 11 - Variantes S (a) et C (b) de l'état monodomaine, illustrée dans un plot plat  $1000 \times 500 \times 10$  nm (simulation par OOMMF). (c) création d'une paroi à  $360^\circ$  pour un champ appliqué dans la grande longueur du plot, (d) qui peut être évitée par l'application d'un champ préalable transverse. Pour (d), si la longueur du plot dépasse quelques centaines de nm, le renversement peut être plus compliqué et mener également à des parois.

### 3.1.2 Plots minces à aimantation perpendiculaire

La structuration d'un matériau à aimantation perpendiculaire sous la forme d'un plot de dimensions latérales finies a deux conséquences. D'une part le facteur de forme  $N$  passe d'une valeur 1 pour la couche mince à une valeur plus faible. Ceci tend à renforcer l'aimantation perpendiculaire, et augmenter la taille de domaine. En première approche on peut remplacer le facteur de qualité  $Q = K_u / K_d$  par un facteur effectif supérieur,  $Q_{eff} = K_u / (N K_d)$ . Le second effet est que les domaines sont confinés latéralement. Ainsi, si le plot a une taille latérale plus petite que la taille de domaine dans la couche mince de même épaisseur, alors le plot sera monodomaine. Si le plot est significativement plus petit latéralement que cette taille de domaine, alors le plot comportera des domaines, mais qui répliqueront concentriquement le contour du plot.

### 3.1.3 Nanoparticules

Les nanostructures sont qualifiées de nanoparticules, ou encore de clusters ou agrégats, lorsque leurs dimensions sont similaires dans les trois directions comme

pour une sphère ou un cube. Les nanoparticules sont souvent fabriquées par voie chimique en solution, ou physique en phase vapeur. Comme pour les plots minces, on attend une transition d'un état multidomaines à un état monodomaine au-dessous d'une diamètre critique  $D_c$ . Cependant, les coefficients de champ démagnétisant sont similaires dans les trois directions, et supérieurs à ceux de plots minces. En conséquence limite monodomaine est repoussée vers les plus petites tailles. Pour les matériaux durs ( $Q > 1$ ) on peut faire une estimation rapide du diamètre critique :  $D_c \approx 6E_w / K_d$ , soit  $D_c \approx 2.5Q\lambda_B$ , où  $E_w$  est l'énergie de paroi par unité de surface. Pour les matériaux doux, on a  $D_c \approx \pi\sqrt{3}\lambda_{\text{éch}}$ .

Exemple : Pour le Fer on trouve  $D_c \approx 15 \text{ nm}$ .

## 3.2 Processus d'hystérésis

La partie précédente traitait de l'état fondamental de nanostructures, c'est à dire dans l'état rémanent. Nous nous intéressons maintenant aux processus d'aimantation, sous l'effet d'un champ magnétique et en présence d'activation thermique.

### 3.2.1 Nanostructures multidomaines

#### 3.2.1.1 Processus de nucléation/annihilation

Considérons une nanostructure multidomaines à la rémanence. Lorsque le champ appliqué  $H$  est important et que  $E_Z$  domine  $E_d$ , la configuration est monodomaine. Lorsque  $H$  est progressivement réduit il existe une valeur, appelée champ de *nucléation*  $H_n$ , où un vortex ou une paroi magnétique se crée à partir du bord et rentre brusquement dans le plot, conduisant à un saut dans le cycle d'hystérésis et une configuration de type Bryant et Suhl pour les grands plots (0). Lorsque le champ est réduit vers zéro la paroi se déplace réversiblement pour équilibrer la taille des différents domaines. Notons que d'autres vortex ou parois sont susceptibles de rentrer, pour des valeurs de champ intermédiaires. Lorsque le champ est augmenté dans la direction opposée chaque paroi et/ou vortex se déplace, jusqu'à une valeur appelée champ d'*annihilation*  $H_{\text{ann}}$ , à laquelle elle/il est expulsé du plot selon un processus irréversible, par un bord (Figure 6 - ).

#### 3.2.1.2 Cycles d'hystérésis

On constate que  $H_n < H_{\text{ann}}$ . Ceci implique une hystérésis, signalée sur les cycles d'aimantation par deux ouvertures symétriques, proche de la saturation. De plus, bien que l'utilisation des coefficients de champ démagnétisant soit sujette à caution dans le cas de nanostructures, puisque les champs démagnétisants sont non uniformes, on constate que  $H_{\text{ann}}$  est proche du champ d'anisotropie dipolaire  $2NK_d / \mu_0 M_s$ ,  $N$  étant le coefficient de champ démagnétisant *dans la direction considérée*. On constate également que la variation réversible d'aimantation entre champ nul et  $H_n$  est quasiment linéaire, et donc la susceptibilité initiale est proche de  $1/N$ .

### 3.2.2 Nanostructures monodomaines

#### 3.2.2.1 Champ de renversement

Le modèle de rotation cohérente (voir encart) décrit correctement les structures monodomaines de taille modérée. Le champ de renversement  $H_r(\theta_H)$  suit d'autant mieux l'astroïde dite de Stoner-Wohlfarth que la taille de nanostructure est faible, c'est-à-dire que l'on est loin de la frontière vers les états multidomaines (voir 3.1). Une conséquence pratique de cette courbe est que  $H_r$  est minimum proche d'un angle d'application du champ à  $45^\circ$  de l'axe de facile aimantation. Cette propriété est exploitée dans les MRAMs, pour diminuer la puissance nécessaire pour le renversement, et pour augmenter la sélectivité d'écriture entre cellules adjacentes (5.1.4). Ceci dit, une déviation expérimentale de  $H_r(\theta_H)$  à l'astroïde est observée, essentiellement proche de la direction de facile aimantation, déviation d'autant forte que la nanostructure est de grande taille. Cette réduction est liée aux déviations locales à l'état d'aimantation strictement uniforme, présentées précédemment.

#### 3.2.2.2 Reproductibilité du renversement d'aimantation

Nous avons vu qu'un état *dit* monodomaine cachait en fait des variantes, comme les états C et S. L'existence de ces domaines de bord pose un problème technologique car elle peut conduire à la formation de parois à  $360^\circ$  durant le renversement, empêchant le renversement ou modifiant significativement la valeur de champ de renversement du cycle suivant. Ceci est illustré sur la Figure 11 - c-d. De plus, même si la formation de parois peut être évitée, les états S et C sont associés à des champs de renversement différents. Pour ces raisons il est essentiel de pouvoir sélectionner de manière reproductible l'état rémanent.

Une solution utilisée est d'appliquer une séquence de champ plus élaborée qu'un simple cycle d'hystérisis. Dans un premier temps une impulsion de champ est appliquée dans la direction planaire de *difficile* aimantation, inférieure au champ d'anisotropie mais permettant néanmoins de tourner l'ensemble des spins selon la direction transverse. Dans un second temps une impulsion de champ est appliquée dans la direction de facile aimantation, opposée à la direction initiale de l'aimantation, avec un recouvrement temporel avec l'impulsion transverse. Grâce à la polarisation transverse préalable, tous les moments du plot tournent alors en conservant globalement une configuration uniformément aimantée. À l'issue du renversement, l'état S est naturellement sélectionné. Cette procédure s'implémente aisément dans les technologies MRAM par l'utilisation de deux lignes de courant croisées pour produire le champ magnétique au niveau de la cellule (5.1.4).

#### 3.2.2.3 Volume de nucléation

Bien que l'état magnétique à rémanence soit quasiment uniforme, et que le modèle de rotation cohérente s'applique de manière satisfaisante, il faut réaliser que le mode de renversement, dynamique, implique une aimantation non uniforme dès que la taille du système est significativement supérieure aux longueurs magnétiques caractéristiques, notamment la largeur de paroi. Ce mécanisme s'apparente à une nucléation-propagation (T1 Geoffroy). Ainsi, le volume de nucléation qui déclenche le renversement de l'aimantation de la nanostructure, et que l'on a décrit à l'aide du modèle de rotation cohérente (voir encart), a une taille de l'ordre de la largeur de paroi. Le volume total de la particule, souvent grand devant le volume de nucléation,

ne doit donc pas être pris comme référence pour estimer la variation thermique ou dynamique attendue pour le champ coercitif.

### 3.2.3 Influence de la géométrie, des bords et des irrégularités du système sur les processus d'aimantation

#### 3.2.3.1 Rôle des irrégularités de bord

Dans les matériaux massifs la microstructure permet de piéger les parois magnétiques, induisant hystérésis et coercitivité. Dans les nanostructures une source importante d'anisotropie provient de l'effet dipolaire de forme. L'éventuelle irrégularité des contours des nanostructures va donc jouer un rôle similaire à la microstructure des matériaux, piégeant les parois. Par exemple dans les configurations multidomaines de type Van den Berg, les parois s'accrochent sur les irrégularités de bord. Dans le cas des nanostructures monodomaines, la valeur de l'anisotropie de forme est modifiée, parfois de manière significative même pour une rugosité modérée du fait de la rapide décroissance des champs démagnétisants loin du bord, un effet déjà mentionné. Le champ démagnétisant est diminué dans la direction principale. Une rugosité incontrôlée dans un procédé compromet donc le bon fonctionnement d'un dispositif, qu'il utilise des éléments multidomaines ou monodomaine.

#### 3.2.3.2 Constrictions géométriques

Prenons l'exemple d'une bande dans laquelle peut se propager une paroi magnétique. Considérons la paroi comme un objet, son énergie totale est grossièrement  $\mathcal{E} = E_w e W$ , où  $e$  et  $W$  sont l'épaisseur et la largeur de la bande, respectivement. Ainsi, une zone de plus faible largeur constitue un site de piégeage pour les parois (une fois sur place la paroi est bloquée, même sous l'effet d'un champ magnétique inverse). Une zone de plus forte largeur constitue une barrière d'énergie (cette fois-ci, un champ inverse permet de faire revenir la paroi). Ces zones peuvent être une simple rugosité (Cf ci-dessus), ou bien être créées intentionnellement pour manipuler les parois.

#### 3.2.3.3 Parois tête-bêche

Dans une bande de matériau doux l'aimantation est alignée selon la longueur de la bande. En conséquence, une paroi est nécessairement à 180°, et chargée, à l'inverse du cas de couches minces. Ce type de paroi peut être qualifié de *tête-bêche*. Or nous avons vu dans le chapitre précédent que les parois tête-bêche étaient très défavorable énergétiquement, et que dans le cas de couches minces elles se modifient spontanément en parois en zigzag, par exemple. Pour les bandes, on observe en détail deux types de parois, la paroi dite transverse et la paroi vortex (Figure 12 - ).

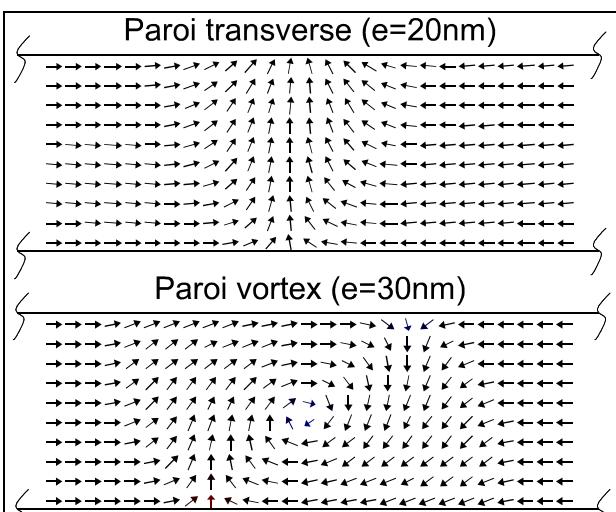


Figure 12 - Parois transverse et vortex, illustrées dans une bande de Permalloy d'épaisseur 150 nm (OOMMF).

### 3.2.4 Activation thermique et superparamagnétisme dans le cas de nanoparticules

La particularité des nanoparticules est d'être de très petite taille. Lorsque leur taille devient comparable inférieure à la largeur de paroi et/ou la longueur d'échange, alors le volume de nucléation  $V_n$  correspond au volume physique  $V$  de la particule, qui se renverse entièrement par rotation cohérente. Une conséquence de l'égalité du  $V_n$  avec le volume physique  $V$  est que l'activation thermique est aisée à mettre en équations, où l'on utilise directement  $V$ , qui est connu, dans l'équation (9).  $H_c$  décroît donc avec  $T$ , et s'annule au-dessus de la température  $T_B$  telle que  $KV = k_B T_B \ln(\tau / \tau_0)$ , où  $\kappa = KV$  est ici l'énergie d'anisotropie totale de la nanoparticule.

Exemple : Pour un temps de mesure de l'ordre de 1s, on obtient l'expression approchée:  $KV \approx 25k_B T_B$ . Ces équations peuvent également être appliquées aux grains constituant les disques durs. Pour permettre la conservation de données sans perte sur au moins dix ans on considère qu'il faut vérifier:  $KV \approx 40 - 60k_B T_B$ .

Pour les couches minces  $KV$  diminue 'seulement' proportionnellement à l'épaisseur. Dans les nanoparticules, du fait de la réduction de dimension dans les trois directions,  $KV$  diminue proportionnellement à la taille au cube.  $T_B$  peut donc rapidement devenir très faible en fonction de la taille de la particule et du matériau utilisé (Tableau 1 - ). Pour  $T > T_B$  l'aimantation se retourne spontanément sous la seule action de l'agitation thermique, l'aimantation rémanente mesurée est donc nulle. Cette situation est similaire à celle du paramagnétisme du moment d'atomes isolés, mais en considérant cette fois le macrospin  $M$  de l'ensemble de la particule. Cet état est qualifié de *superparamagnétisme*.

L'analyse de la courbe d'aimantation dans le régime superparamagnétique permet de déduire des informations, notamment sur la valeur  $M$ , donc du volume  $V$  de la particule si  $M_s$  est connu. Pour une très faible anisotropie l'aimantation, normalisée à 1, suit la loi  $\langle m \rangle = \coth(h) - 1/h$ ; pour particule d'anisotropie significative, aimantée selon son axe facile, on trouve  $\langle m \rangle = th(h)$ . Dans ces formules  $h = \mu_0 M H / k_B T$ . Ces fonctions sont les Langevin et Brillouin ½ intervenant en paramagnétisme (TI Geoffroy), mais ici avec un argument faisant intervenir  $M$ , pas un moment atomique. Utiliser une fonction inadaptée conduit à une valeur de  $M$  erronée.

**Tableau 1 - Paramètres de quelques matériaux magnétiques.**  $M_s$ ,  $K$  et  $\mu_0 H_a$  sont estimés à 300K.  $D_{25}$  est le diamètre au-dessous duquel un agrégat est superparamagnétique à 300K.

Matériau	$T_c$ (K)	$M_s$ (kA/m)	$K$ (kJ/m <sup>3</sup> )	$\mu_0 H_a$ (T)	$D_{25}$ (nm)
Fe	1043	1720	48	0.06	16
Co	1394	1370	530	0.77	7.2
Ni	631	490	-4.5	0.02	35.3
$Fe_3O_4$	858	480	-13	0.05	24.8
$BaFe_{12}O_{19}$	723	382	250	1.3	9.2
$Nd_2Fe_{14}B$	585	1280	4 900	7.7	3.4
$SmCo_5$	995	907	17 000	38	2.3

$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$	1190	995	3 300	6.6	3.9
$\text{FePt L1}_0$	750	1140	6 600	12	3.1
$\text{CoPt L1}_0$	840	796	4 900	12	3.4
$\text{Co}_3\text{Pt hex.}$	1100	1100	2 000	3.6	4.6

## 4 Systèmes composites : effets et concepts

Dans les parties précédentes nous avons considéré des systèmes magnétiques individuels : une couche, un plot, un agrégat etc. Dans la pratique les dispositifs utilisent des systèmes composites, c'est-à-dire associant plusieurs matériaux et/ou nanostructures. Plusieurs raisons motivent l'utilisation de systèmes composites. Un premier cas est celui de l'association de propriétés différentes, par exemple une couche pour ses propriétés de coercitivité, avec une structure présentant des propriétés de magnétotransport, pour servir de capteur magnétique. Un second cas est pratique : il est peu commode industriellement d'ajuster des valeurs numériques de propriétés telles que coercitivité, anisotropie etc., qui nécessitent une optimisation de matériau pour chaque nouvelle valeur, voire un changement de composé. On combine alors des matériaux de propriétés différentes en une seule hétérostructure, dont les propriétés sont intermédiaires entre les deux couches constituantes, et que l'on ajuste par le biais des épaisseurs de couches individuelles. C'est par exemple le cas de la coercitivité. Un troisième cas est l'apparition de nouveaux effets liés à l'aspect composite, comme les magnétorésistances géante et tunnel. Nous présentons l'ensemble de ces cas de figure dans cette partie, ainsi que leur mise en pratique.

### 4.1 Effets de couplage direct

On appelle couplage direct le couplage qui résulte de l'échange magnétique entre les atomes à l'interface de deux systèmes magnétiques en contact direct. Nous considérons ici une couche ferromagnétique ou ferrimagnétique, en contact avec un autre système magnétique qui peut être de toute nature : ferro-, ferri- ou antiferromagnétique. On décrit souvent un couplage par un terme d'énergie quadratique  $E_J = -J \cos^2 \theta$ , où  $\theta$  est l'angle que forment les deux aimantations à l'interface. Pour  $J > 0$  on parle de *couplage positif*, ou encore ferromagnétique. Pour  $J < 0$  on parle de *couplage négatif*, ou encore de couplage antiferromagnétique.

#### 4.1.1 Couplage direct entre deux milieux ferromagnétiques

##### 4.1.1.1 Généralités

Dans le cas des matériaux 3d ferromagnétiques le couplage est positif. Il peut être négatif dans certains cas de systèmes associant des terres rares et métaux de transition, notamment dans le cas de ferrimagnétiques, où le signe de  $J$  dépend également de la position par rapport à une éventuelle température de compensation. Dans tous les cas  $J$  est tellement fort que les aimantations interfaciales des deux matériaux partagent toujours la même direction. Les diverses situations pouvant alors être rencontrées sont détaillées ci-dessous.

##### 4.1.1.2 Systèmes bicouches rigidement couplés

Si la dimension des deux systèmes *en s'éloignant des interfaces* (l'épaisseur, pour une couche mince) est significativement plus faible que toutes les longueurs

magnétiques caractéristiques, alors l'aimantation est uniforme dans l'ensemble du système. Les propriétés de la couche synthétique résultante sont alors une pondération des propriétés des couches prises individuellement. Pour deux couches d'épaisseurs  $e_1$  et  $e_2$ , d'aimantations  $M_{s,1}$  et  $M_{s,2}$ , et d'énergies anisotropie  $K_1$  et  $K_2$ , les propriétés de la couche synthétique sont les suivantes :

$$(10) \quad M_s = \frac{e_1 M_{s,1} + e_2 M_{s,2}}{e_1 + e_2}$$

$$(11) \quad K = \frac{e_1 K_1 + e_2 K_2}{e_1 + e_2}$$

$$(12) \quad H_c \approx \frac{e_1 M_{s,1} H_{c,1} + e_2 M_{s,2} H_{c,2}}{e_1 M_{s,1} + e_2 M_{s,2}}$$

Pour  $M_s$  et  $K$ , qui sont des grandeurs intrinsèques, ces expressions sont exactes. En revanche la valeur de  $H_c$  est une estimation, dérivée en supposant que le mode de renversement d'aimantation reste inchangé. Notons que la formule (12) n'est également pas applicable cas où l'une des deux couches est un antiferromagnétique (voir 4.1.2).

Les couches rigidement couplées sont utiles lorsque l'on veut obtenir un compromis de propriétés de deux matériaux différents. Cette approche peut se substituer à l'utilisation d'un alliage, soit parce que l'alliage n'est pas souhaitable pour des raisons technologiques (fabrication, résistance des matériaux etc.), soit parce qu'elle permet d'obtenir des performances supérieures à tout alliage connu. Ainsi dans les vannes de spin on utilise couramment des bicouches Co/FeNi ou CoFe/NiFe. Le NiFe, constituant l'essentiel de la couche, permet d'obtenir une coercitivité modérée. Le Co ou CoFe, déposé en très faible quantité (quelques plans atomiques, soit moins de 1nm), permet d'imposer une polarisation en spin importante à l'interface avec une barrière tunnel, pour obtenir une forte magnétorésistance (voir 5.1.1). Le concept est utilisé également pour associer un matériau magnétostrictif, généralement de faible aimantation spontanée, avec un matériau plus faiblement magnétostrictif, mais d'aimantation plus importante. La magnétostriction absolue est réduite, mais on peut augmenter la susceptibilité magnétostrictive, qui est souvent le paramètre pertinent des dispositifs comme les actionneurs, fonctionnant dans un régime linéaire de réponse en champ.

#### 4.1.1.3 Systèmes bicouches épais

Inversement, si la couche douce est épaisse, l'aimantation a la possibilité d'être non uniforme selon l'épaisseur. Imaginons le cas idéal d'une couche très dure, que l'on supposera rigide même sous champ extérieur  $H$  :  $\theta \equiv 0$ . Appelons  $e$  l'épaisseur de la couche douce. En champ extérieur nul le couplage magnétique à l'interface induit une orientation de la couche douce selon  $\theta = 0$ , et l'aimantation uniforme est l'état de plus basse énergie. Si on applique un champ  $H$  selon  $\theta = \pi/2$  l'aimantation de la couche douce tend à tourner réversiblement vers le champ. Le cas d'un champ uniforme est délicat à traiter analytiquement. Considérons le cas, simplifié, où  $H$  est ressenti sur une épaisseur  $e_H \ll e$ . La rotation d'aimantation  $d\theta/dx$  est alors uniforme à travers toute la couche douce. Dans le cadre des faibles rotations, la susceptibilité en surface  $\chi_s = dM_s / dH$  s'exprime selon  $\chi_s = e \cdot e_H / \Lambda_{\text{éch}}^2$ . La

susceptibilité moyenne dans la couche est  $\bar{\chi} = e \cdot e_H / 2A_{\text{éch}}^2$ .  $\bar{\chi}$  est la grandeur pertinente pour un capteur basé sur la magnétorésistance anisotrope, pour lequel le courant se répartit dans toute la couche. On constate que, pour  $e_H$  donné,  $\bar{\chi}$  est d'autant plus important que la couche douce est épaisse. En pratique, on optimisera  $e$  en fonction du champ de travail maximum  $H_{\max}$  attendu, de manière à maximiser  $\bar{\chi}_{\max}$  sans toutefois que la saturation ne soit atteinte, ceci pour rester dans le régime d'une réponse linéaire. Dans un tel dispositif, le rôle de la couche épaisse est de polariser la couche douce dans une direction donnée, pour que les processus d'aimantation s'effectuent dans une direction de difficile aimantation, donc de manière réversible.

#### 4.1.1.4 Systèmes nanocristallisés monophasés

Dans les paragraphes précédents les systèmes couplés sont présentés dans le cas d'école d'un système bicouches. Ils ont en fait été proposés et mis en œuvre d'abord dans le cas de matériaux massifs présentant une *structure granulaire nanocristalline*. Les deux applications principales sont les matériaux ultra-doux, dits à *anisotropie évanescante*, et les matériaux à aimants permanents de haute performance.

Pour l'anisotropie évanescante on considère un matériau constitué de grains nanométriques, de taille moyenne  $D_g$ , chacun d'énergie d'anisotropie par unité de volume  $K_g$ , rigidement couplés mais dont les directions de facile aimantation sont aléatoirement orientées. Un calcul autocohérent permet de calculer l'anisotropie effective  $K$ . Le résultat dépend de la dimension  $d$  du système. En pratique on considère surtout  $d=3$  pour un matériau massif,  $d=2$  pour une couche mince d'épaisseur inférieure à la taille d'un volume de nucléation. Le raisonnement est le suivant. Le volume de nucléation est de taille  $\lambda^d$  où  $\lambda$  est la largeur de paroi, donc le moyennage s'effectue sur  $N = (\lambda / D_g)^d$  grains. L'anisotropie effective est réduite d'un facteur statistique  $\sqrt{N}$  par rapport à  $K_g$  :  $K = K_g / \sqrt{N}$ , soit :

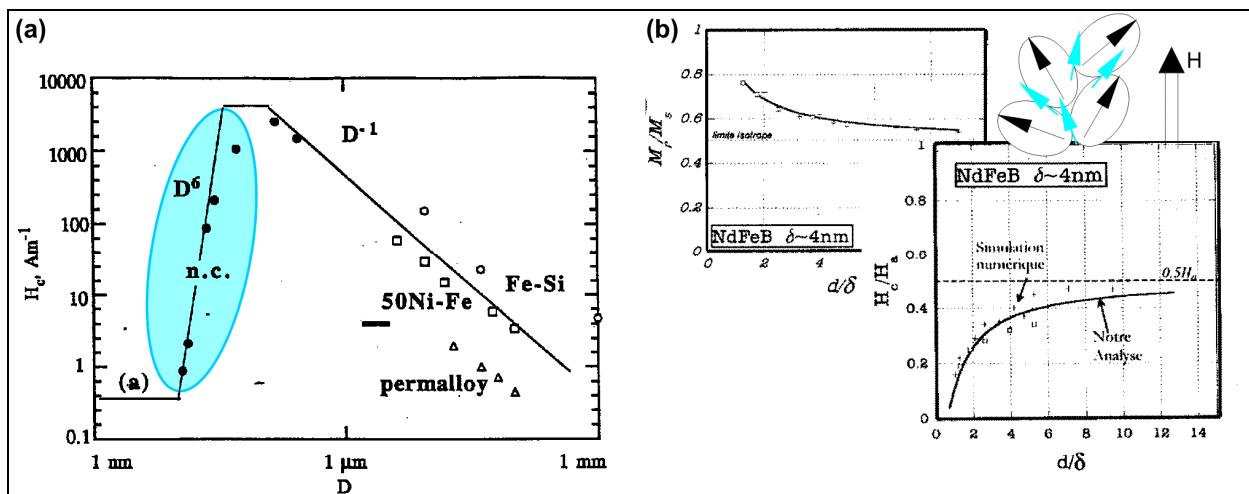


Figure 13 - Exemples (a) pour les matériaux doux, de variation de coercivité avec la taille de grain  $D$ ; la zone des nanocristallisés est surlignée [adapté de G. Herzer, IEEE Trans. Magn. 26, 1397 (1990)] (b) pour les matériaux durs, d'augmentation de rémanence (voir illustration schématique aux joints de grains) et diminution de coercivité des nanocristallisés.

$$(13) \quad K = K_g \left( \frac{\lambda}{D_g} \right)^{-\frac{d}{2}}$$

Enfin, la largeur de paroi est déterminée par l'anisotropie effectivement ressentie sur la grande distance  $\lambda$ , c'est-à-dire  $K$ . On a donc

$$(14) \quad \lambda = \pi \sqrt{A/K}.$$

De ces deux équations on déduit :

$$(15) \quad K = \left( \frac{K_g}{\pi^{d/2} A^{d/4}} \right)^{\frac{4}{4-d}} D_g^{\frac{2d}{4-d}}.$$

Numériquement, on trouve  $K_{d=3} \sim D_g^6$ ,  $K_{d=2} \sim D_g^2$  et  $K_{d=1} \sim D_g^{2/3}$ . Pour les matériaux massifs on constate donc une décroissance très rapide de l'anisotropie pour les petites tailles de grains, selon une puissance sixième. Le modèle reproduit bien les observations expérimentales (Figure 13 - ). Le modèle cesse d'être valable pour  $D_g > \lambda$ , et l'on observe alors une décroissance de  $H_c$  avec l'augmentation de  $D_g$ , un phénomène classique lié aux tailles de grains, également rencontré dans les matériaux pour aimants permanents. En pratique, les matériaux nanocristallisés sont obtenus en deux étapes. Dans une première étape fabrication d'un amorphe (trempe rapide, verres métalliques), dans une seconde étape un recuit contrôlé permet de nucléer des grains de la taille désirée, quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres.

Une seconde application de la nanocristallisation est l'augmentation de rémanence de matériaux pour aimants permanents. En effet, ces matériaux sont en général constitués de grains fins, agglomérés et dont les axes de facile aimantation sont distribués dans l'espace. Il en résulte une rémanence inférieure à un. Si les grains sont assimilés à des macrospins, et sont parfaitement découplés par échange, alors la rémanence peut être calculée exactement, voir le paragraphe 2.3.1. Si les grains sont couplés par échange, par exemple à la suite d'un frittage, la rémanence est augmentée du fait de la direction d'aimantation médiane de la matière située à l'interface entre deux grains (Figure 13 - b). Le raisonnement présenté précédemment n'est pas directement applicable, car la largeur de paroi est très faible pour les matériaux durs, et il n'y a pas de moyennage de l'anisotropie sur un grand nombre de grains. Notons que l'augmentation de rémanence se fait au détriment d'une baisse de la coercitivité.

#### 4.1.1.5 Systèmes nanocristallisés composites

Une approche plus générale que celle présentée ci-dessus consiste à réaliser des matériaux nanocristallisés multiphasiques. L'idée est d'associer des matériaux de propriétés magnétiques différentes, dont on cherche à réaliser un compromis. Par exemple, partant de stoechiométries d'aimants Nd-Fe-B ou Sm-Co, un surdosage en Fe-B, Fe ou Fe-Co, conduit à la formation supplémentaire de grains ou matrices de phases douces  $Fe_3B$ , Fe ou Fe-Co. Pour des proportions optimisées, une augmentation de la rémanence est obtenue, au prix d'une perte modérée de coercitivité.

#### 4.1.2 Couplage direct ferromagnétique – antiferromagnétique

Nota: Pour un approfondissement consulter (9).

Nous présentons ici le couplage entre une couche ferromagnétique ou ferrimagnétique (F) et une couche antiferromagnétique (AF), communément appelé couplage ferro/antiferro. Cette association induit deux effets sur le cycle d'hystérésis de la couche F : d'une part une augmentation de la coercitivité, d'autre part un décalage des cycles par rapport au champ nul, lorsque le système est refroidi sous la température de Néel de AF tandis que F est maintenu saturé par un champ magnétique extérieur (Figure 14 - ). Les cycles seront alors décalés d'une valeur  $H_E$  dans la direction de ce champ, par un effet mémoire appelé *biasing* ou *exchange bias*. L'augmentation de  $H_c$  peut être comprise simplement : la coercitivité résulte de l'anisotropie magnétocrystalline  $K$ , qui existe à la fois dans F et AF, et donc s'ajoute. En revanche le champ extérieur  $H$ , qui permet de décrire le cycle d'hystérésis, n'agit que sur F.  $K$  augmentant et l'énergie Zeeman restant identique,  $H$  doit être plus important pour renverser l'aimantation du système. Dans le cas de deux couches minces, donc rigidement couplées, on peut appliquer la formule (11) pour estimer l'anisotropie équivalente, avec  $M_{s,2} = 0$  pour l'AF. En revanche, (12) ne peut être appliquée car on avait utilisé  $M_s$  comme intermédiaire de calcul, ici nul pour l'AF. Un calcul doit être refait, et l'on trouve :

$$(16) \quad H_c \approx H_{c,F} \left( e_F + \frac{K_{AF}}{K_F} e_{AF} \right)$$

Le décalage des cycles est quant à lui expliqué par le fait que seule une partie de l'AF renverse l'aimantation de ses sous-réseaux lors du renversement de l'aimantation de F. Le renversement partiel peut prendre la forme d'une paroi magnétique perpendiculaire à l'interface AF/F, ou bien d'une rupture assez abrupte de l'échange à l'interface, en cas de désordre à l'interface.  $H_E$  est relié phénoménologiquement à une énergie d'échange  $J_E$  en  $J/m^2$ , selon  $H_E \approx J_E / (M_{s,F} e_F)$  pour les faibles  $e_F$ .  $J_E$  est indirectement relié à  $K_{AF}$ , et dépend de  $e_{AF}$ . Pour  $e_{AF}$  supérieur à quelques dizaines de nanomètres  $J_E$  tend vers une limite. Pour les faibles épaisseurs  $J_E$  diminue et s'annule vers quelques nanomètres.  $J_E$  diminue avec la température, s'annulant parfois avant la température de Néel  $T_N$  de l'AF. Il n'existe à l'heure actuelle aucun modèle permettant de décrire quantitativement ces phénomènes dans tous les matériaux. De plus, les valeurs de  $K_{AF}$  ne sont pas toujours connues. La caractérisation expérimentale reste la meilleure approche (Tableau 2 - ). Notons que  $H_E$  augmente généralement avec le champ de refroidissement appliqué. Les hétérostructures F/AF sont utilisées essentiellement pour augmenter la

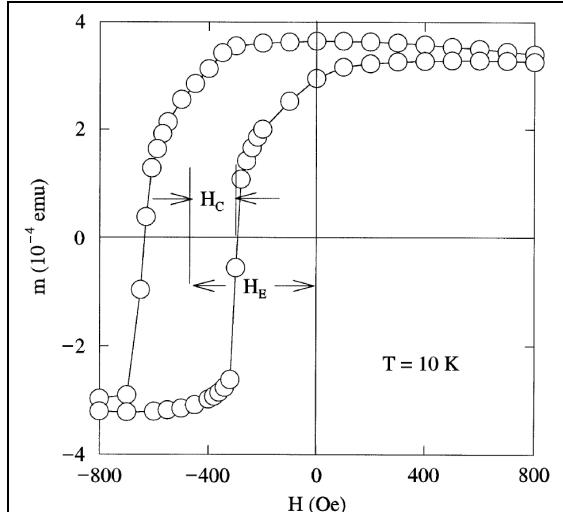


Figure 14 - Définition du champ coercitif  $H_c$  et d'échange  $H_E$  d'un système F/AF [tiré de la Réf. (9)].

coercitivité d'une couche ferromagnétique. Nous voyons ici un exemple concret de l'argument général de l'avantage des hétérostructures sur une couche simple : la valeur de la coercitivité peut être ajustée continûment par le biais de l'épaisseur de l'AF, les caractéristiques de la couche F restant constantes et pouvant être optimisées pour une autre propriété, par exemple une magnétorésistance. Les hétérostructures F/AF sont utilisées dans les capteurs de champ magnétique et les mémoires magnétiques solides (MRAMs, voir 5.1.4). Le tableau Tableau 2 - récapitule les caractéristiques des matériaux antiferromagnétiques les plus utilisés en couches minces. Deux caractéristiques sont nécessaires pour les applications : une énergie de couplage  $J_E$  significative, et  $T_N$  significativement supérieure à 300 K.

**Tableau 2 - Propriétés de quelques matériaux antiferromagnétiques utilisés dans le couplage F/AF.**

Matériau	$T_N$ (K)	$T_B$ (K)	$J_E \approx H_E e_F M_{s,F}$ pour $e_F$ modéré (en $\mu\text{J}/\text{m}^2$ )
NiO	520	470	10-100
CoO	290	290	Nul à 300K
FeMn	500	425	50-500
IrMn	690	525	50-200
PtMn	970	650	50-300
NiMn	1070	640	100-500

## 4.2 Effets de couplage indirects

Les différents éléments d'une hétérostructure magnétique peuvent interagir entre eux même s'ils ne sont pas en contact direct. Les deux principes physiques de ces interactions sont tout d'abord présentés. On examine ensuite plus particulièrement l'influence d'un couplage sur des systèmes bicouches, qui interviennent dans la plupart des dispositifs.

### 4.2.1 Couplage dipolaire

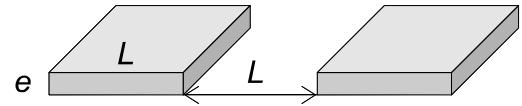
Le champ dipolaire  $\mathbf{H}_d$  ressenti par une nanostructure, issu de nanostructures environnantes, s'ajoute vectoriellement au champ extérieur  $\mathbf{H}_{ext}$  appliqué par l'opérateur.  $\mathbf{H}_d$  influence donc le renversement de l'aimantation, et il convient d'estimer son intensité pour en tenir compte. On ne traite ici que le cas de monodomains.  $\mathbf{H}_d$  est très fortement réduit pour une nanostructures configuration multidomaines, car l'essentiel du flux magnétique se boucle alors dans la nanostructure elle-même.

#### 4.2.1.1 Nanostructures en réseau

Le calcul exact à l'aide de l'équation (4) du champ dipolaire  $\mathbf{H}_d(\mathbf{r})$  issu d'une structure aimantée est complexe à mettre en œuvre. Il convient donc de considérer les cas limites, pour introduire des approximations adéquates. Un cas courant est une assemblée de nanostructures en réseau, par exemple pour réaliser des points mémoire MRAM. Si deux nanostructures sont raisonnablement espacées, typiquement au moins d'une distance égale à leur taille latérale, alors le champ dipolaire rayonné par l'une sur l'autre peut être approché en assimilant chaque nanostructure à un dipôle ponctuel, de moment  $\mathbf{\mu}_i = \mathbf{M}_{s,i} V_i$ , l'erreur commise étant

inférieure à 10%. On utilise alors la formule (2). De plus, il est souvent mentionné que les champs dipolaires sont à longue portée. En réalité, cet argument est valide pour un objet tridimensionnel, mais en dimension 2 ils sont à courte portée, typiquement à l'échelle d'une ou deux couronnes de premiers voisins pour un réseau, qu'il suffit donc de considérer pour estimer  $\mathbf{H}_d$ .

Exemple : Pour deux plots plats à base carrée, d'épaisseur  $e$ , de côté  $L$ , séparés par  $L$ , on trouve dans l'approximation des dipôles ponctuels :  $\mathbf{B} = B_0 [3(\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}_x) \mathbf{u}_x - \mathbf{u}]$  où  $\mathbf{u}$  est le vecteur unitaire orienté selon  $\mu$ ,  $\mathbf{u}_x$  selon  $x$ , et  $B_0 \approx (\mu_0 M_s / 32\pi)(e/L)$ . Pour  $e = 5 \text{ nm}$  et  $L = 100 \text{ nm}$  on trouve  $B_0 \approx 5 \times 10^{-4} \mu_0 M_s$ , soit moins de 1 mT pour tout matériau. Pour  $\mu$  orienté suivant  $x$ , le couplage est positif avec  $\mathbf{H}_d \approx 1 \text{ mT}$  au centre de la cellule adjacente. Pour voir s'il aura une influence, ce champ doit être comparé au champ coercitif attendu.



Dans le cas de nanostructures séparées par un faible espace, le champ dipolaire est fortement inhomogène. Pour des plots plats, d'épaisseur  $e$  faible, une bonne approximation consiste à assimiler chacune des faces latérales à un segment unidimensionnel portant une charge linéique  $\lambda = M_s e \cos(\theta)$  ( $\cos \theta = \pm 1$  pour une aimantation perpendiculaire au bord). Cette approximation permet de proposer une expression assez simple de  $\mathbf{H}_d$  pour les parallélépipèdes. Le champ rayonné dans un plan par un tel segment est

$$(17) \quad H = \frac{\lambda}{4\pi} \sum_{\delta=\pm 1} \left[ \frac{\delta}{\sqrt{\left(x - \frac{\delta L}{2}\right)^2 + y^2}} \left( \mathbf{u}_x - \frac{x - \frac{\delta L}{2}}{y} \mathbf{u}_y \right) \right]$$

avec la géométrie de l'exemple ci-dessus. Pour des nanostructures rapprochées et de forme non parallélépipédique, il est nécessaire d'avoir recours à la simulation numérique.

#### 4.2.1.2 Plots empilés en hétérostructures

Un cas d'intérêt pratique est celui de plots F1 et F2 empilés, séparés verticalement par une fine couche de matériau non magnétique NM. Il n'est pas raisonnable d'assimiler chaque plot à un dipôle ponctuel, du fait du faible espacement. Le couplage est toujours négatif. Une *borne supérieure* du champ dipolaire *moyen* créé par F2 sur F1 est donnée par le champ auto-dipolaire de F2 sur lui-même,  $-N_2 \mathbf{M}_2$ , valeur d'autant plus proche de la valeur exacte que NM est fin. Attention : comme pour le champ démagnétisant, ce champ dipolaire est fortement non uniforme dans les plots plats. Le couplage *effectif* peut se révéler *supérieur* à la valeur moyenne et même à sa borne supérieure mentionnée ci-dessus, si le processus de nucléation

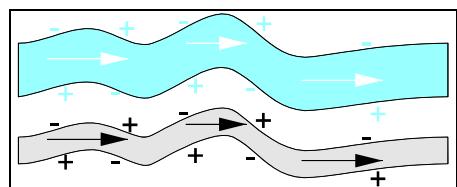


Figure 15 - Couplage dit 'peau d'orange' : en cas de rugosité des charges magnétiques apparaissent aux surfaces des deux couches. Pour une rugosité corrélée verticalement les charges + et - des couches sont proches, induisant un couplage positif.

est localisé au bord du plot, où le champ dipolaire démagnétisant est le plus fort. En pratique les interfaces entre F1, NM et F2 présentent toujours une rugosité, liée au procédé de croissance. Ces interfaces portent donc des charges magnétiques alternées positives et négatives (Figure 15 - ). Un couplage apparaît, appelé *couplage peau d'orange ou couplage de Néel*. Pour l'aimantation planaire, le couplage est toujours positif lorsque la rugosité est corrélée verticalement entre les deux interfaces. Le couplage s'écrit, par exemple pour F1 sur F2 :

$$(18) \quad H_N = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \left( \frac{h^2}{\lambda t_{F2}} \right) M_{s,F1} \cdot \left[ 1 - e^{-2\pi\sqrt{2}t_{F2}/\lambda} \right] \cdot \left[ 1 - e^{-2\pi\sqrt{2}t_{F1}/\lambda} \right] \cdot e^{-2\pi\sqrt{2}t_N/\lambda}$$

où  $h$  est l'amplitude de rugosité et  $\lambda$  sa longueur d'onde latérale. Pour l'aimantation perpendiculaire le couplage peut être positif ou négatif suivant les cas de géométrie et d'anisotropie.

#### 4.2.2 Couplage inter-couches oscillant – RKKY

Nota: Se référer aux revues de Bruno (3) et Stiles (4) pour un approfondissement des phénomènes, la Réf.(5) pour des valeurs pratiques.

Cet effet, *d'origine quantique*, s'observe dans des tricouches F1/M/F2, où Fi désigne un ferromagnétique, et M un métal non magnétique, d'épaisseur  $e$ . Les électrons de conduction de M acquièrent une faible polarisation au contact des Fi. Durant la traversée de M la polarisation de ces électrons décroît en norme tout en subissant une oscillation, qui s'explique par la nature ondulatoire des électrons. On parle *d'oscillation RKKY* (Ruderman – Kittel - Kasuya - Yosida). Si M est suffisamment mince, typiquement quelques nanomètres, alors les directions d'aimantation de F1 et F2 sont couplées par l'intermédiaire de ces électrons. Si, après les oscillations dans M, l'onde électronique présente la même polarisation aux interfaces F1/M et M/F2, alors le couplage est positif (favorise l'alignement parallèle). Si la polarisation est en opposition de phase, alors le couplage est négatif. La théorie, qui décrit ces oscillations et les effets d'interférence liés aux réflexions multiples sur les différentes interfaces, prédit une variation du couplage sous la forme *bilinéaire*

$E = J \cos^2(\theta_1 - \theta_2)$  avec,

dans la limite des épaisseurs  $\geq 1\text{nm}$  :

$$(19) \quad J(t) = \frac{A}{e^2} \sin\left(\frac{2\pi e}{\Lambda} + \Psi\right)$$

**Tableau 3 - Tabulation des propriétés de systèmes à couplage RKKY oscillant : épaisseur pour le premier couplage antiparallèle  $A_1$ , sa largeur  $\Delta A_1$ , son intensité ( $\text{erg/cm}^2$ ), la période principale d'oscillation  $P$  [tiré de (5)].**

Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu
No Coupling	9	3	7	7	Ferro-Magnet	Ferro-Magnet	Ferro-Magnet
	0.1	9	.24	18			
2.89	2.62	2.50	2.24	2.48	2.50	2.49	2.56
Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag
No Coupling	9.5	2.5	5.2	3	3	7.9	3
	.02	*	.12	11	5	11	1.6
3.17	2.86	2.72	2.71	2.65	2.69	2.75	2.89
Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au
No Coupling	7	2	5.5	3	4.2	3.5	
	.01	*	.03	*	.41	10	
3.13	2.86	2.74	2.74	2.68	2.71	2.77	2.88

Element
$A_1$
$\Delta A_1$
$P$
$J_1$
$r_{ws}$

◆ fcc  
○ heptagonal close packed  
⊗ bcc  
◆ complex cubic

Notons la décroissance rapide en  $1/e^2$ , la période d'oscillation  $\Lambda$ , et ajoutons la décroissance de  $A$  avec la température (non indiquée explicitement ici). On constate expérimentalement une faible dépendance des valeurs en l'élément

magnétique 3d (Fe, Ni, Co) pour un métal M donné, voir le Tableau 3 - . Dans la littérature, les valeurs de couplage se trouvent sous deux formes : soit  $A/e^2$  pour une épaisseur fixe, typiquement 1 nm, soit pour le premier maximum de couplage antiparallèle. Il faut donc être attentif à la convention utilisée. Pour certains systèmes deux termes de couplage se superposent, associés à des constantes et périodes différentes. Souvent la courte période se moyenne, et la longue période domine. Enfin, on observe parfois un couplage à 90°, appelé aussi *couplage biquadratique*. Ce couplage se rencontre aux frontières entre les régions à couplages bilinéaire positif et négatif, et résulte d'effets de faible désordre des interfaces (fluctuations d'épaisseur, contact direct F1/F2 etc.). La plupart des études ont été menées pour l'aimantation planaire, bien que le phénomène existe également pour les couches perpendiculaires. Le couplage antiferromagnétique est actuellement utilisé dans les médias de disques durs pour fabriquer des nanocristaux macrospins à moment total réduit pour minimiser les interactions dipolaires.

#### 4.2.3 Cas du couplage faible : décalage de cycles d'hystérésis

Le couplage dont on examine ici les conséquences peut être d'origine RKKY, peau d'orange ou dipolaire. Considérons deux éléments F1 et F2, qui auraient une coercitivité  $H_{c,1} < H_{c,2}$  s'ils étaient isolés. On qualifiera de *faible* un couplage dont le *champ de couplage* ou *champ de bias*  $H_{\text{bias}}$  est raisonnablement inférieur à  $H_{c,2}$ . Alors dans un cycle d'hystérésis le premier renversement intervient à  $H_{c,1} + H_{\text{bias}}$ , de manière prématuée (respectivement retardée) si le couplage est négatif (resp. positif). On estime  $H_{\text{bias}}$  en effectuant un *cycle mineur* ; on a alors  $H_{\text{bias}} = (H_{1,-} + H_{1,+})/2$  (Figure 16 - ). Pour  $H_{\text{bias}} < -H_{c,1}$  le renversement de la couche douce s'effectue avant champ nul.

Historiquement le couplage faible négatif, d'origine surtout RKKY, a été utilisé pour imposer une orientation antiparallèle de couches à rémanence, ceci pour utiliser la magnétorésistance par comparaison avec l'état saturé. Cependant, la force du couplage RKKY est souvent importante et non ajustable continûment. Cette approche a été abandonnée au profit du piégeage d'une couche, dite de référence, à l'aide d'un couplage direct F/AF (voir 4.1.2), voir la mise en forme en vanne de spin (5.1.1). Actuellement le couplage faible est plutôt un inconvénient qu'il convient de minimiser dans les dispositifs, car il contribue à la distribution de champ de renversement de plot à plot. Il faut mentionner que même si le couplage moyen est faible, un couplage transitoire local et fort peut exister lors du passage d'une paroi magnétique qui balaye la couche la plus douce durant le renversement. Ceci peut désaimanter progressivement la couche dure, même sous des champs appliqués  $|H| < H_{c,2}$ . Le piégeage de F2 par une couche AF permet de résoudre ce

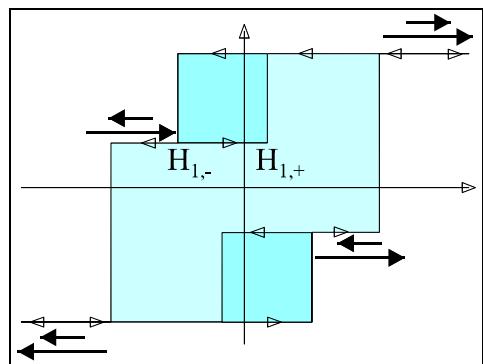


Figure 16 - Cycle d'hystérésis complet (grisé clair) et cycle mineur (grisé sombre) d'une bicouche faiblement couplée. Le sens de parcours des cycles est indiqué par des flèches ouvertes, et la configuration des couches par deux flèches pleines. Ici, le couplage est positif, favorisant l'alignement parallèle.

problème.

#### 4.2.4 Cas du couplage fort : multicouches, antiferromagnétiques artificiel

Le couplage parallèle indirect n'est pas utilisé, on préfère le couplage par échange direct à l'interface. Pour le couplage antiparallèle fort, on utilise en pratique le ruthénium du fait de son fort couplage (Voir Tableau 3 - ), au premier pic de couplage négatif ( $e = 0.5 \sim 0.8 \text{ nm}$ ), Les tricouches Co/Ru/Co sont appelées *antiferromagnétique artificiel* (Anglais : Artificial (ou Synthetic) Antiferromagnet, AAF ou SAF) par analogie avec des moments atomiques d'un AF. Le Co peut constituer l'ensemble de la couche, ou bien n'être présent qu'à l'interface (1nm environ) pour réaliser le couplage RKKY, tandis que l'essentiel du reste de la couche est formé d'un autre matériau magnétique, couplé au Co par échange direct. Les grandeurs effectives d'une AAF sont obtenues en modifiant les équations (10)-(12) :

$$(20) \quad M_s = \frac{|e_1 M_{s,1} - e_2 M_{s,2}|}{e_1 + e_2}$$

$$(21) \quad K = \frac{e_1 K_1 + e_2 K_2}{e_1 + e_2}$$

$$(22) \quad H_c \approx \frac{e_1 M_{s,1} H_{c,1} + e_2 M_{s,2} H_{c,2}}{|e_1 M_{s,1} - e_2 M_{s,2}|}$$

La réduction de  $M_s$  a plusieurs conséquences. La formule (22) montre que la coercitivité est augmentée par rapport à une couche simple, du fait de la diminution de l'énergie Zeeman. De plus pour une nanostructure AAF le champ dipolaire rayonné est réduit, ce qui limite le couplage avec d'éventuelles nanostructures empilées ou environnantes (voir 5.1.4). Cet effet est utilisé depuis quelques années dans les media de disques durs : lorsque l'on diminue la taille des grains des media, actuellement à aimantation planaire, le rapport d'aspect vertical de ceux-ci augmente, aggravant les couplages dipolaires inter-grains. L'AAF permet de réduire ce couplage, tout en conservant la même anisotropie magnétique s'opposant au renversement d'aimantation, donc au superparamagnétisme. On verra dans les MRAMs une utilisation pour compenser le couplage peau d'orange.

Du point de vue micromagnétique, les champs magnétiques internes à F1 et à F2 sont réduits, par rapport à une couche simple. Ceci repousse vers les plus fortes épaisseurs tous phénomènes pilotés par l'énergie dipolaire, notamment la transition vers un état monodomaine. Pour les états multidomaines, la construction de Van den Berg ne peut pas toujours être appliquée : il est courant d'observer en vue de dessus l'aimantation localement perpendiculaire aux bords du plot, comme pour les bicouches couplées antiparallèlement par effet dipolaire (Figure 7 - ). Enfin, les parois magnétiques existent et se déplacent de paire sous forme miroir dans F1 et F2, les charges magnétiques se compensant. Ceci a par exemple pour conséquence de repousser la transition des parois de Bloch vers Néel aux plus fortes épaisseurs, et d'éliminer les queues logarithmiques des parois de Néel, du moins sous champ appliqué nul.

### 4.3 Effets de magnétorésistance

Nota: Ces effets et leurs procédés sont détaillés dans (6). Seul un très bref résumé est proposé ici. On pourra consulter (10) pour l'effet tunnel

magnétique.

La magnétorésistance est une variation de la résistance électrique d'un système magnétique, simple ou en hétérostructure, en fonction de sa configuration d'aimantation. Elle est essentielle car elle assure le lien entre l'information magnétique (mémoire, capteur etc.) et l'électronique. Les dispositifs fonctionnent le plus souvent en régime de susceptibilité, par exemple selon un axe difficile. Ceci élimine les phénomènes d'hystérésis, maximise le signal, et permet une relation linéaire entre signaux magnétique et électronique. Ces effets, tout comme l'effet Hall (TI ?), ont permis un gain substantiel en signal et en compacité par rapport aux méthodes inductives traditionnelles. On dispose des effets suivants.

**La magnétorésistance anisotrope** (anglais : AMR) existe dans tous les matériaux magnétiques conducteurs, et dépend de l'angle  $\theta$  que fait l'aimantation par rapport au courant. La résistance varie selon  $R(H) = R_{\perp} + \Delta R \cos \theta(H)$  avec  $\Delta R = R_{||} - R_{\perp}$ , où  $R_{\perp}$  (resp.  $R_{||}$ ) est la résistance pour le courant perpendiculaire (resp. parallèle) à l'aimantation. Les domaines linéaires sont autour de  $\theta = \pm\pi/4, \pm 3\pi/4$ , et la période vaut  $\pi$ . L'amplitude vaut 2–4 % dans les matériaux optimisés, alliages FeNi et CoNi.

**La magnétorésistance géante** (anglais : GMR), *d'origine quantique*, apparaît dans les hétérostructures F1/M/F2, typiquement des tri- ou multicouches, où M ne fait que quelques nanomètres (comme dans le couplage RKKY). La résistance dépend de l'angle  $\theta_{12}$  que font entre elles les aimantations de F1 et F2 :  $R(\theta_{12}) = R_{\uparrow\uparrow} + \Delta R[(1 - \cos \theta_{12})/2] = R_{\uparrow\uparrow} + \Delta R \sin^2(\theta_{12}/2)$  où  $\Delta R = R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}$  avec  $R_{\uparrow\downarrow} = R(\pi)$  et  $R_{\uparrow\uparrow} = R(0)$ . Le domaine linéaire est autour de  $\theta = \pm\pi/2$ , et la période vaut  $2\pi$ . L'amplitude dans les dispositifs optimisés est 20-30 %. En pratique, le courant est injecté dans le plan des couches (géométrie dite CIP, Current-in-plane).

**La magnétorésistance tunnel** (anglais : TMR) apparaît dans les tricouches F1/I/F2 où I est un isolant non magnétique très mince (1–5 nm). Les variations de résistance sont similaires à celle de la GMR. Les différences sont une plus grande amplitude, pouvant atteindre 50-100 %, et une résistance plus importante, la courant passant *en géométrie perpendiculaire à travers l'isolant*, par l'effet quantique tunnel.

## 5 Mises en application

### 5.1 Mémoires magnétiques non volatiles

Nota: Pour approfondir les aspects de vannes de spin, MRAMs, puces à ADN, consulter (10).

#### 5.1.1 Le principe de vanne de spin

La GMR et la TMR sont les principes physiques des nanostructures avancées, qui permettent de coupler le magnétisme à l'électronique. Les *vannes de spin* sont les hétérostructures, en pratique lithographiées, dans lesquelles sont mis en œuvre ces principes pour leur utilisation pratique. Le rôle d'une vanne de spin est de pouvoir atteindre entièrement et à faible champ appliqué les états parallèle et anti-parallèle des deux couches F1 et F2, pour bénéficier du rapport de magnétotransport maximal. Une vanne de spin consiste en une couche dure fixée par couplage direct

avec un antiferromagnétique pour augmenter sa coercitivité, et d'une couche douce, appelée (abusivement) *couche libre*, dont l'aimantation sera la seule à varier en fonctionnement. La vanne de spin a été inventée en 1991. Les applications des vannes de spin sont les capteurs magnétiques (position ou rotation, compas électronique, têtes lecture pour disques durs et bandes) et les mémoires magnétiques (MRAMs).

Dans la pratique, une vanne de spin optimisée peut avoir une structure très complexe, comme celle présentée sur la Figure 17 -. Suivant les notations de cette figure, la couche dite libre F impose une faible coercitivité, et la couche interfaciale de CoFe rehausse la polarisation à l'interface pour augmenter la magnétorésistance (Cf 4.3). La couche dure piégée est ici une séquence SAF, voir 4.2.2. Outre une hausse de coercitivité et une réduction des champs dipolaires internes et de fuite, le champ de fuite résiduel, qui joue un rôle *démagnétisant* pour la couche douce, est en pratique ajusté par le biais des épaisseurs de AP1 et AP2, de manière à compenser exactement le couplage *positif* peau d'orange exercé sur la couche douce. L'absence totale de couplage est importante pour des dispositifs devant travailler symétriquement en aimantation positive ou négative, typiquement les cellules de MRAMs (voir 5.1.4).

Terminons par deux points pratiques.

En premier lieu, il existe une grande variété de vannes de spin, variant matériaux, épaisseurs, empilements, séquence (SAF au-dessus ou au-dessous), chacune développée pour répondre aux spécificités d'une application donnée. On est toujours amené à effectuer un compromis entre la géométrie, la résistance, la gamme de température de travail, le

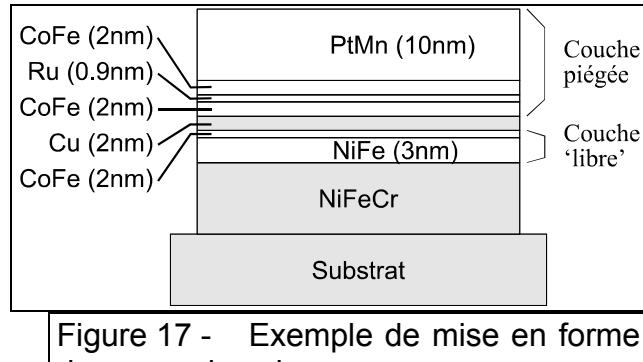


Figure 17 - Exemple de mise en forme de vanne de spin.

champ de fonctionnement, le procédé de croissance, le coût etc. Une vanne de spin optimisée pour une technologie donnée est rarement celle qui maximise l'amplitude de magnétotransport, GMR ou TMR, que l'on peut trouver dans des réalisations plus académiques. En second lieu, notons la variation du signal des vannes de spin avec une période  $2\pi$  de l'orientation de la couche libre, contre une période  $\pi$  pour l'effet d'AMR. Ceci permet par exemple une détermination vectorielle simple d'un champ magnétique, par l'utilisation de capteurs selon trois axes. Pour garantir un fonctionnement en régime linéaire on n'utilise pas de matériau parfaitement doux pour un capteur, mais on impose une anisotropie magnétique uniaxiale planaire modérée, en pratique par dépôt sous champ magnétique ou un effet de forme (ellipse etc.).

### 5.1.2 Tête de lecture / écriture de disque dur

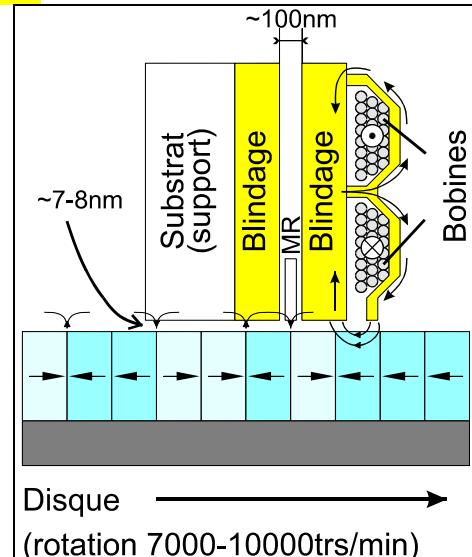
Nota: Ces technologies évoluant très rapidement, il est conseillé de rechercher des informations à jour. Un site Web d'Hitachi propose une série de courts articles introductifs sur de nombreux aspects de l'enregistrement magnétique (<http://www.hitachigst.com/hdd/research/>). Le site de Seagate offre des informations technologiques complémentaires (<http://www.seagate.com/>).

De manière analogue aux technologies des semi-conducteurs, les performances des disques durs augmentent régulièrement, et ceci depuis cinquante ans (Figure 20 - ).

Près de huit ordres de grandeur en densité d'information ont été gagnés depuis les premiers disques, introduits par IBM en 1956. Le taux d'augmentation de capacité a atteint jusqu'à 50%/an ces dernières années. Cette progression repose sur de nombreux développements (électronique, mécanique, tribologie etc.). Nous nous focalisons ici sur deux éléments directement liés à l'enregistrement : un disque rotatif, ou *media*, et la tête de lecture / écriture.

Le media est une couche en grains magnétiques, dont la direction locale l'aimantation d'un petit paquet de grains code un *bit d'information* '0' ou '1'. En détail, le disque est une plaque de verre recouverte de différentes couches : sous-couches (accrochage mécanique), Cr (impose une texture planaire de l'axe facile des grains), CoPtCrB/Ru(6Å)/CoPtCrB (SAF d'épaisseur totale  $\leq 20$  nm, minimise les couplages dipolaires intergrains), carbone et lubrifiant pour limiter la dégradation de la couche magnétique et de la tête par frottement. La couche supérieure de CoPtCrB est plus épaisse que celle du dessous, avec un rapport de l'ordre de 3 à 1kA ( $kA = kA \cdot m^2 \times (m^2)$ ). La coercitivité des grains est de l'ordre de 0.4 – 0.5 T (0.32 – 0.40 MA/m). (voir également 2.3.1)

Une tête actuelle comporte deux parties solidaires mais aux fonctions distinctes, pour l'écriture et la lecture (Figure 18 - ). La tête d'écriture est un électroaimant micrométrique muni d'un circuit de matériau doux. Le bobinage est planaire, c'est-à-dire que la tête est fabriquée par étapes de dépôts et lithographies sur un support qui *in fine* est placé perpendiculairement au media, lui présentant sa tranche. L'ouverture du circuit de matériau doux (anglais, *gap*) est face au media, et permet d'appliquer un champ magnétique localisé pour écrire un bit d'information. Les propriétés requises pour le matériau doux sont une forte aimantation à saturation pour créer un champ de fuite important, une forte résistance pour minimiser les pertes en fréquence, une bonne résistance à la corrosion car des températures jusqu'à 250°C peuvent temporairement être atteintes du fait de frottements avec le media. Des matériaux utilisés sont le Permalloy  $Fe_{20}Ni_{80}$ ,  $Fe_{55}Ni_{45}$ , FeTaN, FeAlN, CoZrNb amorphe etc. La tête de lecture consiste en un capteur local de champ magnétique, qui détecte les transitions entre les bits grâce aux champs de fuite générés entre des bits opposés. Après des têtes inductives, puis AMR à partir de 1991, le capteur consiste maintenant en des vannes de spin GMR, utilisées pour la première fois en 1998 par IBM. La vanne de spin est entourée de deux écrans magnétiques (c.à.d. constitués de matériaux doux), pour écranner le flux des bits adjacents. La distance entre les deux écrans (vanne de spin plus deux couches isolantes) limite la taille des bits. On voit concrètement qu'ici un paramètre contraignant pour la vanne de spin est son épaisseur, qui impose un compromis sur d'autres aspects, notamment l'amplitude de GMR. La largeur finie est réalisée par



Disque → (rotation 7000-10000trs/min)

Figure 18 - Vue schématique d'un disque dur (en bas) et de sa tête de lecture-écriture (resp. au milieu, avec la vanne de spin magnétorésistive (MR), et à droite). Des flèches indiquent les champs de fuite induits par les transitions entre bits, ainsi que le champ d'écriture.

lithographie. La hauteur doit également être la plus restreinte possible puisque le champ de fuite n'est ressenti que proche de la surface, sinon le signal magnétorésistif efficace serait faible. Enfin, la couche libre doit être aimantée horizontalement au repos, pour répondre linéairement au champ de fuite, vertical. Pour ce faire, de petits éléments de matériau dur sont positionnés de part et d'autre de la couche, pour la polariser. De plus, la couche piégée est aimantée verticalement, de manière à travailler en régime linéaire de GMR, soit proche de  $\pi/2$ . Notons enfin que le signal de lecture est très inférieur à la GMR maximum de ~ 20 %, car seul un petit domaine angulaire de linéarité est exploré.

Exemple : En 2005 l'épaisseur de la vanne de spin, couches isolantes comprises, est de 40nm environ, la taille d'un bit est  $200 \times 30$  nm, la hauteur de vol de la tête au-dessus du media est 15 nm. Le démonstrateur le plus avancé a été présenté en mars 2005 par Hitachi, avec une densité de 230Gb/in<sup>2</sup> ( $1\text{Gbit/in}^2 = 6.45\text{Gbit/cm}^2$ ). L'industrie est actuellement en train de développer une technologie de disques aimantés perpendiculairement, avec les têtes correspondantes. Les premiers produits sont annoncés pour 2007, avec 1Tbit par disque dur.

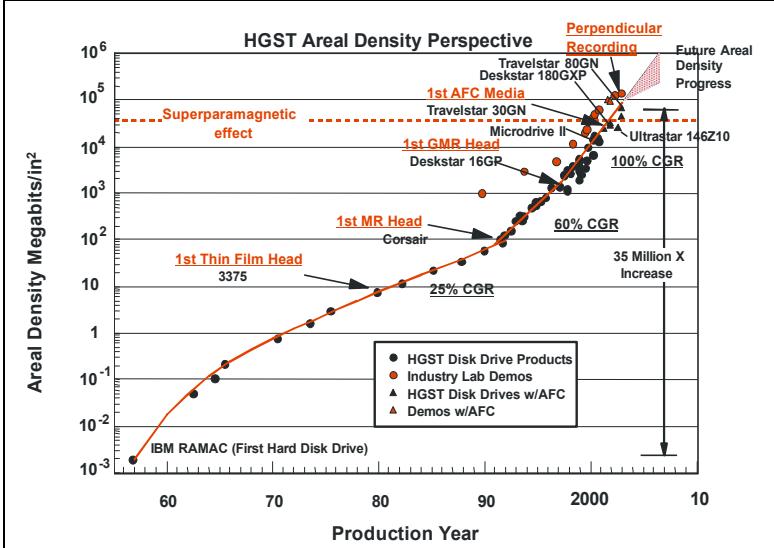


Figure 20 - Évolution de la densité de bits stockés sur les disques durs, en liaison avec les ruptures technologiques introduites (Source : Hitachi Global Storage, centre de recherche de San José, voir site web en Nota). Note : l'AFC (AntiFerromagnetically Coupled) est similaire au principe des SAF, mais pour deux couches non parfaitement compensées.

### 5.1.3 Enregistrement magnéto-optique

Nota: Pour un approfondissement des concepts consulter (8) ; pour les matériaux voir (7).

La technologie de sauvegarde sur disques magnéto-optiques (MO), commercialisée à partir de 1988, est intermédiaire entre celle des disques durs et celle des CD et DVD. Elle a le caractère magnétique de la première, la lecture/écriture optique et les médias amovibles des seconds.

L'écriture d'un bit est *thermomagnétique*, et réalisée sur un media à anisotropie perpendiculaire : un champ magnétique non fortement localisé, et un chauffage par laser focalisé pour abaisser localement la coercitivité,

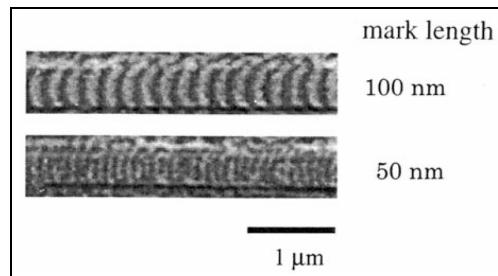


Figure 19 - Forme de bits sur média magnéto-optique TbFeCo amorphe, enregistré en mode de champ pulsé MFM (voir texte). [tiré de (8)]

sont appliqués simultanément. Le champ minimum à appliquer, ainsi que la taille de la zone écrite, peuvent être estimés par une équation, dite de Huth. Cette équation relie le rayon minimum de stabilité  $r$  à un certain nombre de paramètres : champ coercitif  $H_c$  de propagation des parois, champ démagnétisant local, gradient thermique lié au chauffage. En principe la taille de bit est limitée par la longueur d'onde  $\lambda$  du laser, par la loi  $2r = \lambda / 2NA$ , où  $NA = n \sin \theta$  est l'ouverture numérique du faisceau et  $n$  l'indice du milieu au-dessus du média. La diffusion thermique dans le media et la vitesse de rotation dégradent cette valeur. Cependant des astuces permettent d'écrire des bits plus petits que cette limite. L'approche la plus utilisée est le MFM (anglais, *Magnetic Field Modulation*) : le faisceau chauffe continûment, et le champ est pulsé. On tire parti de la variation rapide de mobilité des parois magnétiques dans le gradient de température, qui permet d'écrire les bits sous forme de croissants nettement plus fins que la longueur d'onde, par recouvrement des positions successives du faisceau (Figure 19 - ).

La lecture utilise le principe de l'effet Kerr, c'est-à-dire la rotation du plan de polarisation d'un faisceau lumineux par réflexion sur une surface magnétique, l'angle de rotation étant directement proportionnel à l'aimantation, pour un matériau donné. On utilise le même laser que celui de chauffage, mais avec une puissance inférieure. La lumière est polarisée linéairement, et la rotation Kerr est de l'ordre de 0,1-1°. C'est l'optimisation de cette rotation qui a conduit à l'utilisation de media aimantés perpendiculairement, qui induisent une plus forte rotation Kerr.

Le media d'enregistrement doit posséder les propriétés suivantes : 1. une forte coercitivité (stabilité de l'information dans le temps), qui chute sous chauffage (pour permettre l'écriture) 2. un fort signal MO pour maximiser le signal de lecture (réduction des erreurs, faible temps d'adressage) 3. une aimantation perpendiculaire et une forte rémanence 4. des absorption et réflexion appropriées, sans inhomogénéités, stable structuralement et chimiquement en température, et peu coûteux. Les matériaux amorphes sont avantageux car l'absence de grains cristallographiques limite le bruit. En revanche, cette homogénéité limite dans le futur la taille des bits, du fait de l'instabilité des petits domaines magnétiques dans le cas d'une coercitivité de propagation de paroi faible, ce qui est souvent le cas des matériaux amorphes. Le BiMn a été considéré historiquement, mais jamais implémenté. Pratiquement, on utilise des alliages ternaires ou quaternaires TR-MT (terres rares - métal de transition), essentiellement à base de Tb-Fe avec 20-30% de TR, déposés par pulvérisation sur substrat refroidi à température ambiante.

Pour expliquer comment optimiser de ces matériaux, rappelons quelques-uns de leurs principes physiques (TI Geoffroy). Les *moments de spins* atomiques de TR et de MT sont couplés antiparallèlement. Pour les TR légères (sept premières de la série), le moment orbital est plus grand que le moment de spin, et lui est aligné antiparallèlement, donc le matériau est globalement *ferromagnétique*. Ils possèdent donc une aimantation significative, donc l'aimantation perpendiculaire est difficile à stabiliser. Pour les TR lourdes le moment orbital est parallèle à celui de spin, donc le matériau est *ferrimagnétique*. En pratique, on utilise cette seconde classe de matériaux, proche de la température de compensation où les deux sous-moments sont similaires en norme mais opposés en signe, résultant en une annulation de l'aimantation totale. Notons que les effets MO ne dépendent pas du moment résultant du ferrimagnétique, mais de chacune des sous-composante, TR et MT. Une aimantation faible n'implique donc pas nécessairement des effets MO faibles. Cette seconde classe TR-MT étant privilégiée, on constate que la  $T_c$  des alliages TR-Co est trop élevée pour l'écriture thermomagnétique, et l'on utilise plutôt le Fer, allié avec

Tb, ou Dy.  $M_s$  et  $H_c$  sont ajustés par la concentration en TR; la température de Curie être ajustée par substitution du Fer par du Co. L'anisotropie perpendiculaire est induite par le procédé de dépôt (température et vitesse dépôt, pression du gaz, énergie du plasma), qui favorise une texture de l'arrangement atomique local. Du point de vue des propriétés magnétiques le TbFeCo est le meilleur alliage, mais son signal MO devient faible à courte longueur d'onde, limitant la densité de stockage. On utilise alors une seconde couche, de GdFeCo déposée sur le TbFeCo et qui lui est couplé par échange direct. L'information est donc stockée dans la sous-couche dure en TbFeCo, et la lecture s'effectue sur la surcouche, en utilisant des procédés fondés sur déplacement de paroi (DWDD: *Domain Wall Displacement Detection*), l'expansion de domaines (MAMMOS: *Magnetic Amplifying Magneto-Optical System*), etc.

Pratiquement, les médias MO sont des disques de 3,5 et 5,25 pouces de diamètre (8,9 et 13,3cm), de capacités respectives de 1.3GB et 5.2GB respectivement (début 2005). Le marché est dominé par les compagnies asiatiques: Sony, Fujitsu, TDK, Samsung. Récemment le stockage MO a perdu un terrain considérable au profit des disques purement optiques, devenus réinscriptibles, CD-RW et DVD-RW. Cependant, il reste plusieurs avantages qui pourraient reprendre le dessus pour une technologie ultime dans le futur, sur les disques optiques comme sur les disques durs. Ceci concerne la taille de bit, mais surtout le temps d'enregistrement et la force du champ magnétique à appliquer. Par application d'un champ seul, le temps d'écriture est limité par la période de précession magnétique, de l'ordre de 100ps ( $10^{-10}$  s, soit au rythme de 10GHz). La limite thermomagnétique est elle l'ordre de 1ps ( $10^{-12}$  s, soit au rythme d'1THz). De plus, pour poursuivre les gains en densité les grains doivent être plus petits, et le  $H_c$  doit être augmenté pour lutter contre le superparamagnétisme. Le procédé de chauffage en MO est plus adapté aux gains d'échelle, que la production de champs plus forts dans les disques durs, limitée par le  $M_s$  des matériaux doux. La question d'un enregistrement mixte, thermomagnétique, est d'ailleurs évoquée pour les disques durs classiques.

**Tableau 4 - Principaux matériaux métalliques magnétiques à propriétés adaptées à l'enregistrement magnéto-optique. Adapté de (8).**

Matériau	Méthode de dépôt	Température de recuit (°C)	Température de Curie (°C)	Rémanence	Cœrcitivité ( $10^5$ A/m)	Rotation Kerr (°)
MnBi	Évaporation sous vide	300	360	1	2	0.6
MnCuBi	Évaporation sous vide	400	180	1	1-2	0.43
PtCo	Pulvérisation	600	400	1	1-2	0.8
TbFeCo (amorphe)	Pulvérisation	Aucun	150-250	1	1	0.36
[Pt/Co] <sub>n</sub>	Évaporation sous vide	Ambiante	250-300	1	1	0.36

#### 5.1.4 Mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAMs)

Nota: L'article E 2 135 contient des informations complémentaires sur l'intégration des MRAMs (densité, électronique spécifique). Voir également <http://www.mram-info.com/>

Contrairement au stockage de masse sur disques ou bandes, la caractéristique des mémoires vives, en particulier des ordinateurs, est de pouvoir accéder dans le temps d'horloge à n'importe quel bit de mémoire. On parle de *mémoire à accès aléatoire* (anglais: RAM, pour *Random Access Memory*). Actuellement ces mémoires sont fondées sur le stockage de charges électriques, et doivent être *rafraîchies* régulièrement pour ne pas perdre l'information ; on dit qu'elles sont *volatiles*. Ce procédé a deux inconvénients majeurs. En premier lieu une puissance est consommée même en l'absence de travail, un handicap pour les technologies portables. En second lieu, l'information est perdue en cas de coupure de courant, imposant une procédure de redémarrage. Le stockage de

l'information sous forme de *mémoires magnétiques à accès aléatoire* (anglais : MRAM) est susceptible de résoudre ce problème. Des MRAMs de démonstration sont sorties en 2004 avec une capacité de quelques MB. Les principaux acteurs mondiaux du marché sont Freescale (ex-Motorola) et IBM-Infineon (Altis technology), et quelques petites compagnies de type start-up comme Micromem (<http://www.micromeminc.com/>), Spintron (<http://www.spintron.fr/>).

Pratiquement, une MRAM est un réseau matriciel de vannes de spin TMR, chacune de taille 100 – 200 nm environ (Figure 21 - ). La lecture se fait par mesure de la résistance, après ouverture d'un transistor placé sous la cellule. L'anisotropie magnétique, nécessaire à la conservation de l'information, est obtenue par l'utilisation d'une forme planaire allongée des cellules magnétiques. Le champ magnétique d'écriture est généré par passage d'un courant dans deux lignes perpendiculaires, souvent appelées *bit line* et *digit line*. Toute la difficulté consiste à renverser l'aimantation de la seule cellule à l'intersection, sans influencer celles sous les deux lignes de courant. Du fait de sa petite taille, le champ de retournement de couche libre de la vanne de spin renverse sont d'aimantation selon le modèle de retournement cohérent selon une l'astroïde (voir encadré, et 3.2.2). La géométrie de champs croisés cumule donc deux avantages pour offrir une bonne sélectivité d'adressage. En premier lieu le champ magnétique est plus fort en intensité d'un facteur  $\sqrt{2}$  à l'intersection. En second lieu, en choisissant l'axe de facile aimantation de la cellule parallèlement à l'une des lignes, à l'intersection le champ magnétique

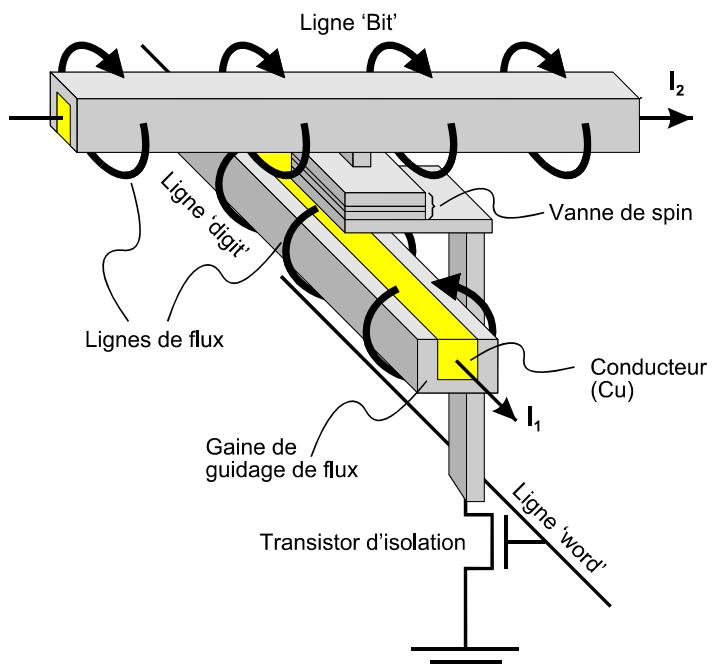
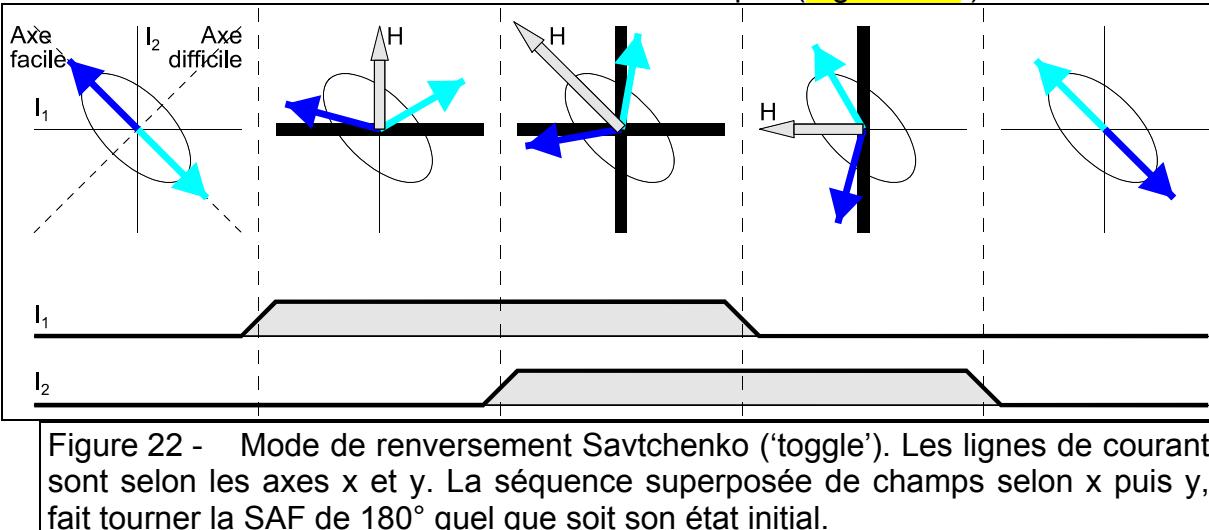


Figure 21 - Vue éclatée d'une cellule de MRAM. Noter l'utilisation de guides de flux pour maximiser le champ magnétique au niveau de la vanne de spin. La forme de celle-ci est ici purement schématique.

fait un angle de  $\pi/4$  sur le diagramme d'astroïde, bénéficiant ainsi d'un champ de renversement réduit d'un facteur 2 par rapport au champ d'anisotropie. Comme le champ est ressenti dans les directions principales, facile ou difficile, pour les autres cellules, le facteur de sélectivité est au final  $2\sqrt{2}$ . Cette géométrie permet également de minimiser l'effet de désorientation angulaire de la cellule, la courbe de renversement présentant un minimum à  $\pi/4$ .

Malgré cette sélectivité accrue, des précautions doivent être prises dans les faits. L'uniformité structurale des bits requiert un parfait contrôle des procédés de dépôt et de lithographie. De plus il est indispensable de travailler sur des cycles d'hystérésis centrés en champ (voir la compensation des champs de couplage, au 5.1.1). Enfin les cellules rectangulaires ne sont pas souhaitables du fait de l'existence de domaines de bord, induisant des états de type S ou C (voir 3.2.2.2). Les formes elliptiques sont plus adaptées.

Récemment un nouveau procédé de renversement d'aimantation, plus sélectif, a été proposé et breveté par Motorola (devenu Freescale). Ce procédé est appelé mode *Toggle* ou *Savtchenko*. Il consiste à utiliser une couche SAF partiellement compensée (voir 4.2.4) également pour la couche *libre* de la vanne de spin. On tire alors parti du mécanisme dit de *spin-flop*, analogue à celui observé dans les matériaux antiferromagnétiques : la susceptibilité d'un système de deux spins fortement couplés antiparallèlement est plus forte dans la direction perpendiculaire aux deux spins. En effet ceux-ci s'orientent vers le champ selon une loi de susceptibilité linéaire, alors que la susceptibilité est de second ordre seulement si le champ est appliqué dans la direction des spins. Dans les MRAMs, le renversement est opéré par la succession de deux impulsions de courant qui se chevauchent dans le temps, qui produisent un champ magnétique tournant dans le temps, induisant la rotation de la couche SAF libre de  $180^\circ$  en trois étapes (Figure 22 - ).



## 5.2 Application des nanoparticules magnétiques en biologie

Nota: Pour approfondir le sujet on peut consulter des articles du recueil J. Phys. D: Appl. Phys. 36 (2003), et le site internet [www.magneticmicrosphere.com](http://www.magneticmicrosphere.com), qui propose une bibliographie complète, des contacts industriels etc.

### 5.2.1 Généralités

L'intérêt des nanoparticules magnétiques pour la biologie tient à la possibilité de

manipulation à distance (non invasive), par un champ magnétique, dont l'action sous conditions modérées est non avérée sur les milieux biologiques. Les particules peuvent être superparamagnétiques, ou ferro-/ferri-magnétiques. Les particules superparamagnétiques offrent la possibilité d'"allumer" et d'"éteindre" le moment magnétique effectif, par application ou non d'un champ magnétique extérieur, et d'éviter également l'agrégation des particules sous l'effet des champs dipolaires. Les particules ferromagnétiques sont utilisées lorsqu'une aimantation plus élevée est requise. La petite taille des nanoparticules présente également deux avantages. D'une part elle permet leur transport dans les vaisseaux et tissus, voire jusque dans les cellules. D'autre part, les forces magnétiques agissant sur les nanoparticules sont faibles ; elles ne détériorent pas les tissus biologiques, même vivants.

La préparation de nanoparticules pour applications biologiques requiert trois étapes : **Fabrication des nanoparticules** proprement dites, c'est à dire du matériau magnétique. Les matériaux les plus utilisés sont les oxydes de Fer (maghémite  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , magnétite  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ). Ces particules sont disponibles dans la gamme de taille 10 – 300 nm, et sont généralement superparamagnétiques. Les produits sont classés en deux catégories, appelées SPIO (anglais, pour *SuperParamagnetic Iron Oxides*) si les particules individuelles ont un diamètre supérieur à 50nm, et USPIO (anglais, pour *Ultrasmall SuperParamagnetic Iron Oxides*) pour des diamètres inférieurs à 50nm. Les USPIO sont suffisamment petites pour pouvoir traverser l'enveloppe de cellules si elles sont fonctionnalisées avec les peptides adéquats. L'utilisation de ferromagnétiques de métaux 3d, Fe, Co et Ni est également intéressante pour obtenir des particules de fort moment. Cependant elle est plus délicate, car le Ni et Co sont toxiques, et le Fe s'oxyde et se métabolise dans l'organisme facilement. La passivation, décrite ci-dessous, est alors cruciale et plus délicate à réaliser.

**Passivation par un matériau biocompatible** ; on parle alors de *beads*, terme anglais. Pour les oxydes de Fer on utilise le dextran, l'alcool polyvinyle (anglais, PVA pour *PolyVinyl Alcohol*), des phospholipides, de la silice. Pour les métaux on peut utiliser l'Au.

**Fonctionnalisation**. Pour certaines applications la surface des particules passivées est fonctionnalisée, c'est à dire greffée de molécules qui s'hybrideront avec d'autres molécules, dites cible (séquences d'ADN, toxines, virus etc.), qui pourront ainsi être ciblées.

Nous avons mentionné ci-dessus que les particules les plus couramment utilisées sont superparamagnétiques, car l'utilisation de particules à moment rémanent pose un problème d'agrégation possible sous l'effet des champs dipolaires. Cette tendance dépend de la force dipolaire d'une part, et de l'agitation thermique d'autre part (mouvement Brownien du fluide). Plus les particules sont grosses et plus la tendance à l'agrégation est importante. L'agrégation est également défavorisée par la couche de passivation et l'éventuelle couche de fonctionnalisation, qui éloignent les dipôles donc diminuent la force dipolaire. On peut également jouer sur répulsion électrostatique entre les couches de ligands.

### 5.2.2 Agents de contraste en IRM

Les nanoparticules magnétiques sont utilisées comme agent de contraste en Imagerie par Résonance Magnétique (IRM, en anglais MRI pour *Magnetic Resonance Imaging*). Le principe de l'IRM est la détection de la précession des spins nucléaires d'atomes d'hydrogène autour d'un fort champ longitudinal **B**. La précession est induite par un faible champ transverse excitateur, et présente une

résonance piquée à la pulsation d'excitation  $\omega_0 = \gamma B$ , avec  $\gamma = 2.67 \times 10^8 \text{ rad.s}^{-1} \cdot \text{T}^{-1}$ .

Dans un gradient de champ magnétique seule une portion localisée des spins nucléaires entre en résonance. La mesure de la réponse sous de multiples gradients, permet après un traitement mathématique de dresser une carte spatiale de cette réponse, offrant une vue tridimensionnelle du sujet.

En présence de nanoparticules le champ  $B$  est localement altéré, du fait du champ dipolaire des nanoparticules. Ceci induit une diminution de la réponse à l'excitation, donc du contraste sur l'image tridimensionnelle reconstruite. En utilisant des nanoparticules fonctionnalisées pour révéler certaines molécules ou cellules, cancéreuses par exemple, on peut ainsi révéler des effets qui ne seraient pas décelables par IRM classique. Cette méthode commence à être utilisée sur l'homme. L'IRM est particulièrement adaptée à l'imagerie de tissus profonds. Pour des tissus superficiels il est plus simple d'avoir recours à des marqueurs fluorescents.

### 5.2.3 Délivrance médicinale locale

Certaines thérapies visent des zones locales précises : organe, tumeur etc. Il peut s'agir de délivrance de molécules (chimiothérapie etc.), de noyaux radioactifs, ou de thérapie génique. Or, dans une administration classique les molécules actives se dispersent dans l'ensemble du corps. Donc d'une part peu de molécules participent réellement à l'action thérapeutique, d'autre part des effets secondaires peuvent apparaître du fait de la concentration élevée de ces molécules dans le reste du corps. Une délivrance locale permettrait à la fois de remonter la concentration là où est nécessaire, tout en diminuant les quantités totales injectées.

L'utilisation de nanoparticules fonctionnalisées par les molécules actives permet cette délivrance locale. Le principe est d'appliquer au niveau de la zone à traiter un fort champ magnétique. La concentration des nanoparticules est permise par le gradient du champ, associé à une force  $F_m = (\mu \cdot \nabla)B$ , qui tend à déplacer les nanoparticules vers la zone de plus fort champ. L'élimination des molécules se fait par retrait du champ, ou bien par son déplacement. Cette technique intéresse également les militaires, pour purifier le sang en cas d'attaque chimique, dans une méthode de séparation *in vivo*.

Discutons l'optimisation de  $F_m$ , notamment dans les vaisseaux, où du fluide circule et tend à emporter les nanoparticules.  $F_m$  croît avec le volume, alors que le frottement fluide croît avec la taille (en régime laminaire  $F_f = 6\pi\nu Rv$ , où  $\nu$ ,  $R$  et  $v$  sont respectivement la viscosité, le rayon de la particule, la vitesse relative de l'écoulement. En régime turbulent, le frottement croît selon surface). Or, la taille du cœur magnétique est limitée à 100nm environ, pour ne pas bloquer les capillaires. Il est donc nécessaire de maximiser  $M_s$ , impliquant le recours à des nanoparticules de Fe ou de Co, avec cependant les difficultés mentionnées plus haut. Quantitativement, considérons une particule superparamagnétique dans le régime de réponse linéaire. Son moment moyen dans le temps est:  $\mu = V\chi H$ . La force exercée sur cette particule est  $F_m = (\mu \cdot \nabla)B$ , soit après quelques manipulations:

$F_m = V\chi \nabla(B^2 / 2\mu_0)$ . En supposant que la particule est d'anisotropie magnétique très faible et donc que son moment peut être décrit par une fonction de Langevin, on trouve:

$$(23) \quad \mu = \frac{\mu_0 M_s}{3k_B T} V^2 H$$

$$(24) \quad \mathbf{F}_m = \frac{M_s}{6k_B T} V^2 \nabla(B^2)$$

Pour les conditions hydrodynamiques régnant dans les artères, le champ doit être de l'ordre de 0,2T et son gradient de 10 à 100 T/m. Ceci impose l'utilisation d'aimants permanents puissants, en pratique des NdFeB. Il est néanmoins difficile d'imposer ces gradients pour des tissus profonds, ce qui reste la principale difficulté de la méthode, dont l'efficacité n'a été réellement démontrée que chez l'animal pour l'instant.

Des nanoparticules sélectivement greffées à des molécules cibles sont également utilisées à des fins de séparation et de purification, ex vivo ou bien in vivo (en expérimentation seulement, pour une désintoxication lors d'une contamination chimique ou virale, pas exemple).

#### 5.2.4 Séparation et biopuces

Nota: On consultera le chapitre 7 de (10) pour un approfondissement.

Le séquençage ADN, ou plus encore son analyse statistique dans une population pour identifier un gène comme facteur de risque, requièrent la reconnaissance de nombreuses séquences élémentaires. L'analyse de liquides biologiques nécessite également des recherches multiples.

La reconnaissance des séquences (ou molécules) se fait par hybridation de séquences (ou molécules) complémentaires. La détection de l'hybridation se fait grâce à la fluorescence de nanoparticules métalliques ou semi-conductrices greffées sur ces molécules complémentaires. Actuellement ces analyses sont pratiquées dans des éprouvettes par micro-pipettage, et l'analyse d'image de réseaux d'éprouvettes (caméra ou scanner). Des recherches sont en passe d'aboutir pour mener ces analyses à l'aide de *puces à ADN*, dispositifs entièrement électroniques. Ceci améliorera la compacité, permettant intégration et portabilité, réduction des quantités de liquide nécessaires, et baisse des coûts.

Une biopuce consiste en un micro-réseau greffé en molécules complémentaires, un circuit de mélange faisant appel à la microfluidique, des traceurs greffés aux molécules à analyser, et un détecteur. La première approche repose toujours sur des particules fluorescentes, et consiste à réaliser un réseau de photodétecteurs en regard des zones greffées. La seconde approche, que nous décrivons ici, consiste à utiliser des nanoparticules magnétiques, détectées par des capteurs magnétorésistifs placés sous les zones greffées. Comme pour la délivrance locale, ces nanoparticules doivent posséder une forte aimantation, mais sans rémanence pour éviter l'agrégation, préférentiellement du fait d'une configuration à fermeture de flux plutôt qu'au superparamagnétisme. Ces particules sont partiellement polarisées par un champ magnétique pour créer un champ de fuite. Les champs créés sur la puce par des lignes de courant atteignent 1–3 kA/m, les champ extérieurs pouvant être très supérieurs. Les détecteurs étudiés pour détecter ces champs de fuite utilisent des vannes de spin TMR ou GMR, des multicouches GMR, des anneaux à AMR, ou l'effet Hall planaire. Le champ dipolaire créé par la nanoparticule sur le capteur peut être déterminé en utilisant d'une part la fonction de Langevin de réponse au champ extérieur (3.2.4), d'autre part l'approximation du dipôle ponctuel [Eq.(2)]. En pratique, les éléments magnétorésistifs sont montés en pont de Wheatstone pour optimiser la sensibilité, atteignant environ 100nT. Les tests sont pour l'instant menés sur des particules micrométriques, mais cette sensibilité doit permettre de détecter des particules de quelques dizaines de nanomètres, qui sont préférables pour ne pas

entraver l'hybridation.

### 5.2.5 Hyperthermie locale

L'hyperthermie locale consiste à augmenter localement la température d'un tissu biologique pour détruire sélectivement des cellules. Une température de 42°C appliquée durant 30min est suffisante. Compte tenu des circulations de fluides et des échanges thermiques, difficiles à modéliser dans les tissus, l'estimation de la puissance nécessaire est délicate. Un ordre de grandeur est  $100 \text{ mW/cm}^3$ . Cette puissance est obtenue en injectant des nanoparticules magnétiques, auxquelles on fait subir des cycles d'hystérésis par application d'un champ magnétique alternatif de fréquence  $f$  dans la gamme 0.1–1MHz. Les nanoparticules peuvent être réparties de manière uniforme et chauffées uniquement localement si le champ est local. Il est également possible de fonctionnaliser les nanoparticules pour qu'elles aillent se fixer préférentiellement sur les cellules cibles. Pour estimer la puissance de chauffage fournie par ce procédé, il faut distinguer deux cas. Pour les particules ferromagnétiques, le cycle d'hystérésis complet est décrit pour une amplitude de champ supérieure à  $H_c$ . La puissance délivrée est donc  $P_{FM} = \mu_0 f \int H.dM$ ,  $M$  étant le moment de l'ensemble des particules. Notons que  $H_c$  augmente avec  $f$  (voir 2.3.2.3), donc la puissance réelle sera supérieure à celle estimée par mesure de cycles quasistatiques. Inversement, un facteur qui diminue cette valeur est la dispersion d'orientation des particules. Pour les particules superparamagnétiques  $\chi = \chi' + i\chi''$ , deux coefficients dépendant de la fréquence. Dans la limite des faibles champs, on trouve  $P_{SPM} = \mu_0 V \pi f \chi'' H^2$ ,  $V$  étant le volume magnétique total des particules. Dans tous les cas  $H_{max}.f$  doit être limité pour éviter une influence sur les tissus. La valeur de  $5 \times 10^8 \text{ A.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  est communément admise. L'hyperthermie locale encore en phase de test animal.

## Bibliographie

- (1) Introduction to the Theory of Ferromagnetism, A. Aharoni, Oxford University Press (2000).
- (2) Magnetic domains. The analysis of magnetic microstructures, A. Hubert et R. Schäfer, Springer (1999).
- (3) Theory of interlayer exchange interactions in magnetic multilayers, P. Bruno, J. Phys.: Condens. Matter. 11, 9403 (1999).
- (4) Interlayer exchange coupling, M. D. Stiles, J. Magn. Magn. Mater. 200, 322 (1999).
- (5) Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d, and 5d transition metals, S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. 67, 3598 (1991).
- (6) Magnétorésistance géante et électronique de spin, M. Hehn et A. Schuhl, Techniques de l'Ingénieur, E2 135.
- (7) Magneto-optical recording materials, R. J. Gambino et T. Suzuki, IEEE (2000)
- (8) S. Tsunashima, Magneto-optical recording, J. Phys. D: Appl. Phys. 34, R87 (2001).
- (9) Exchange bias, J. Nogués et I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. 192, 203

(1999).  
(10) Magnetoelectronics, Ed. M. Johnson, Elsevier Academic Press (2004).