

**Titre:** Propriétés magnétostatiques et résonance ferromagnétique de réseaux de nanofils en configuration multicouche  
Title:

**Auteur:** Salah Hadj-Messaoud  
Author:

**Date:** 2011

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Hadj-Messaoud, S. (2011). Propriétés magnétostatiques et résonance ferromagnétique de réseaux de nanofils en configuration multicouche [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.  
Citation: <https://publications.polymtl.ca/759/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/759/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de recherche:** David Ménard  
Advisors:

**Programme:** Génie physique  
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

PROPRIÉTÉS MAGNÉTOSTATIQUES ET RÉSONANCE  
FERROMAGNÉTIQUE DE RÉSEAUX DE NANOFILS EN CONFIGURATION  
MULTICOUCHE

SALAH HADJ-MESSAOUD

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES

(GÉNIE PHYSIQUE)

DÉCEMBRE 2011

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

PROPRIÉTÉS MAGNÉTOSTATIQUES ET RÉSONANCE  
FERROMAGNÉTIQUE DE RÉSEAUX DE NANOFILS EN CONFIGURATION  
MULTICOUCHE

Présenté par : HADJ-MESSAOUD Salah

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. MASUT Remo A., Ph.D., président

M. MÉNARD David, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. YELON Arthur, Ph.D., membre

## DÉDICACE

*À Nadia, Farid et Abder*

## REMERCIEMENTS

C'est ainsi que cette aventure magnétique se termine, clôturant deux belles années à plonger dans le monde de la recherche en génie physique. Durant cette période, plusieurs personnes m'ont positivement influencé sur divers aspects et j'aimerais consacrer quelques lignes pour tous les remercier.

J'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de recherche, David Ménard, pour m'avoir accepté au sein du groupe, et de m'avoir apporté tout le support nécessaire à mon développement scientifique et personnel. Merci également de m'avoir fait confiance, de m'avoir laissé autant de liberté dans l'exploration d'un sujet loin d'être facile, et finalement d'avoir été aussi patient pour la rédaction de ce mémoire. Enfin merci pour tout le dur travail et les courtes nuits passées à m'aider pour ce mémoire.

Je remercie les professeurs Arthur Yelon et Remo Masut, d'une part pour consacrer un temps précieux à étudier ce mémoire, et d'une autre part pour leur influence tout au long de ma maîtrise, que ce soit en réunion de groupe ou dans une salle de cours. Je suis également très reconnaissant envers Remo Masut de m'avoir donné la chance de développer mes capacités pédagogiques dans le cours de *Champs Électromagnétiques*. Merci également au professeur Patrick Desjardins pour son cours de *Germination, croissance et microstructure des couches minces* et pour sa grande qualité de pédagogue. Un projet expérimental ne pourrait évidemment fonctionner sans un excellent support technique et je remercie Jean-Philippe Masse m'avoir aidé à effectuer les mesures MET ainsi que Jiri Cerny pour ses prouesses techniques au laboratoire de magnétisme.

Le plaisir que j'ai pris à effectuer cette maîtrise est attribué en grande partie à un groupe formidable et enthousiaste et je remercie toute l'équipe : Christian Lacroix, Gabriel Monette, Élyse Adam, Nima Nateghi, Vincent Boucher, Fanny Béron, Djamel Seddaoui, Basile Dufay,

Paul Boyer Nicolas Schmidt, Dany Chagnon, et plus particulièrement Louis-Philippe Carignan qui a été un vrai un mentor scientifique dans le cadre de ce projet. J'ai passé de grands moments avec eux, que ce soit au laboratoire ou dans un bar! J'aimerais également remercier Stéphane Bedwani pour avoir égayé toutes ces journées en tant que voisin de bureau, et d'avoir toujours eu de bonnes discussions à partager autour d'un café sur le balcon. Je remercie mes amis polytechniciens de longue date avec qui j'ai traversé maintes aventures depuis le début du baccalauréat et avec qui j'espère continuer à en vivre d'autres : JayGay Lapointe et MaudeGay Giordanengo, JambéDe Saint-Aubin, Dodz Baril-Dionne, et Jonathan Zev Daniel-Rivest.

J'aimerais remercier le CRSNG et David Ménard pour leur support financier qui m'a permis de me donner entièrement à la recherche sans les tracasseries associées généralement au statut d'étudiant.

J'aimerais enfin remercier Ambre Seguelas pour tout le soutien moral qu'elle m'a offert durant la période d'écriture du mémoire et je tiens à m'excuser encore pour toutes les fins de semaine où j'ai dû privilégier le magnétisme plutôt que sa compagnie.

## RÉSUMÉ

Des réseaux de nanofils ferromagnétiques multicouches ont été synthétisés afin d'en étudier les propriétés magnétiques statiques et dynamiques. Les réseaux consistent en des membranes poreuses d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) dans lesquelles sont agencés verticalement des nanofils constitués d'alternances de couches de  $\text{Co}_{94}\text{Fe}_5\text{B}_1$  et de Cu. Les objectifs de cette étude sont de maîtriser la fabrication de ces réseaux, d'en explorer les propriétés magnétiques statiques et dynamiques, de développer un modèle expliquant leur anisotropie magnétique, et enfin de démontrer expérimentalement la faisabilité de réseaux de nanofils magnétiquement isotropes.

Les nanofils multicouches de CoFeB/Cu sont obtenus par électrodéposition à tension pulsée dans des matrices d'alumine. Le diamètre des nanofils est d'environ 45 nm et la distance inter-fil d'environ 110 nm. Deux configurations de nanofils ont été étudiées: la première consiste en l'alternance régulière de couches de CoFeB et Cu, la deuxième consiste en l'alternance de tricouches CoFeB/Cu/CoFeB séparées par d'épaisses couches de Cu.

Les nanofils multicouches ont été caractérisés structurellement par microscopie électronique à balayage (MEB) et par microscopie électronique en transmission (MET). Ces mesures ont confirmé la difficulté de caractériser avec précision l'épaisseur des couches ferromagnétiques. Nous avons aussi pu observer une structure polycristalline dans les couches de CoFeB.

Nous avons par la suite développé un modèle de champ d'anisotropie effective prenant en compte les interactions dipolaires entre les couches ferromagnétiques et l'anisotropie de forme des couches. Nous avons généralisé un modèle existant pour les configurations bicouches et l'avons adapté à la configuration tricouches. Cela a permis notamment de considérer des aimantations adjacentes libres au sein d'une tricouche et d'atteindre un plus grand degré de liberté

pour ajuster l'anisotropie effective du réseau de nanofils. À partir de ce modèle nous avons étudié le comportement et la sensibilité du champ effectif en fonction de divers paramètres géométriques des nanofils.

Nous avons effectué des mesures de magnétométrie statique par magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) ainsi que des mesures de résonance ferromagnétique sur plusieurs échantillons de réseaux de nanofils bicouches et tricouches. Nous en déduisons des comportements qualitatifs et nous comparons les champs effectifs expérimentaux à ceux prédits par le modèle. Cela nous a permis de discuter sur la validité du modèle et les résultats suggèrent des contributions additionnelles à l'anisotropie telles que l'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie de surface dans les couches ferromagnétiques.

Nous montrons enfin les résultats de magnétométrie statique (courbes d'hystérésis) et de résonance ferromagnétique (champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique) pour deux échantillons magnétiquement isotropes. Les résultats confirment le comportement isotrope de ces échantillons mais la nature des mécanismes permettant cette isotropie n'est pas encore claire à ce jour.

Ces travaux ouvrent la voie à une ingénierie plus fine de réseaux de nanofils multicouches en apportant une compréhension sur les paramètres les plus pertinents pour obtenir des réseaux au comportement particulier (anisotropie dans le plan ou hors-plan, isotropie, etc.). De plus, le modèle tel que nous l'avons présenté se prête bien à un raffinement, par exemple en implémentant des contributions supplémentaires à l'anisotropie, tel que des anisotropies magnétocristallines.

## ABSTRACT

Arrays of multilayer nanowires have been synthesized to study their static and dynamic magnetic properties. The nanowires are columns of alternating  $\text{Co}_{94}\text{Fe}_5\text{B}_1$  and Cu layers grown in a porous alumina membrane. The objectives of this study are to control the fabrication of these arrays, to explore their magnetic properties by static and ferromagnetic resonance measurements, to develop a model which explains the behavior of the magnetic anisotropy, and to demonstrate that we can synthesize magnetically isotropic nanowire arrays.

The CoFeB/Cu multilayer nanowires are grown in a porous alumina matrix by pulsed electrodeposition. Their length is several tens of micrometers, their diameter is about 45 nm and the interwire length is around 110 nm. Two types of configuration have been studied: one consisting of a periodic CoFeB/Cu bilayer stacking, the other of CoFeB/Cu/CoFeB trilayers, separated by thick Cu layers between trilayers.

The structure of the nanowires has been characterized by scanning electrons microscopy (SEM) and by transmission electrons microscopy (TEM). These measurements showed that it is difficult to distinguish and measure the thickness of the different layers. We also observed that the CoFeB layers have a polycrystalline structure.

We present an effective anisotropy field model taking into account dipolar interactions between all the ferromagnetic layers as well as the shape anisotropy of the layers. We have generalized an existing model based on the bilayer configuration and have adapted it to the trilayer structure. A novelty of this model was to explicitly highlight the internal dipolar interaction between adjacent layers within a trilayer which makes it possible to tune the effective anisotropy of the arrays. With this model in hand we were able to study the behavior and sensitivity of the effective field to different geometric parameters of the nanowire arrays.

We then conducted static magnetic measurements with a vibrating sample magnetometer (VSM) as well as ferromagnetic resonance measurements on several bilayer and trilayer nanowire arrays. We study their qualitative behavior and we compare the experimental effective fields to those predicted by the model. This allows us to discuss the validity of the model and understand if other anisotropy contributions could have a significant effect on these materials.

Finally, we show the experimental results of VSM and ferromagnetic resonance measurements for two magnetically isotropic multilayer nanowire arrays, which are interesting from a scientific and technological point of view. The results confirm the isotropic behavior of these samples; however we do not yet understand the necessary conditions in order to obtain these types of material.

These results should open the way to a more controlled engineering of arrays of multilayer nanowires and bring a deeper understanding of what are the most relevant parameters in order to obtain specific material behaviors (in-plan or out-of-plane anisotropy, isotropy, etc.). Moreover, the model as we presented it is suitable for further improvement by, for example, taking into account additional anisotropy contributions.

## TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	III
REMERCIEMENTS .....	IV
RÉSUMÉ.....	VI
ABSTRACT .....	VIII
TABLE DES MATIÈRES .....	X
LISTE DES TABLEAUX.....	XII
LISTE DES FIGURES .....	XIII
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS .....	XIX
LISTE DES ANNEXES .....	XX
CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 2 FABRICATION ET CARACTÉRISATION STRUCTURELLE .....	10
2.1 Fabrication des membranes nanoporeuses .....	10
2.2 Électrodéposition des nanofils .....	15
2.3 Caractérisation structurelle.....	19
2.3.1 Microscopie électronique à balayage .....	19
2.3.2 Microscopie électronique en transmission .....	22
2.4 Discussion .....	27
CHAPITRE 3 MODÉLISATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE .....	30
3.1 Anisotropie magnétique effective .....	30
3.1.1 Contributions à l'anisotropie effective.....	31
3.1.2 Tenseur d'anisotropie effective.....	34
3.1.3 Formes analytiques des tenseurs d'anisotropie .....	43

3.1.4	Densité d'énergie magnétique.....	47
3.2	Champ effectif d'anisotropie des nanofils tricouches.....	51
3.3	Prédictions du modèle d'anisotropie effective .....	54
3.4	Synthèse .....	65
CHAPITRE 4 MESURE DES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES.....		68
4.1	Propriétés magnétostatiques .....	68
4.1.1	Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) .....	69
4.1.2	Propriétés magnétostatiques des nanofils bicouches.....	73
4.1.3	Propriétés magnétostatiques des nanofils tricouches .....	79
4.2	Résonance ferromagnétique .....	83
4.2.1	Détermination expérimentale du champ effectif par FMR .....	84
4.2.2	Résonance ferromagnétique des nanofils bicouches .....	85
4.2.3	Résonance ferromagnétique des nanofils tricouches .....	90
4.3	Réseaux de nanofils multicouches à comportement isotrope.....	94
4.4	Synthèse .....	98
CHAPITRE 5 CONCLUSION .....		101
BIBLIOGRAPHIE .....		105
ANNEXES .....		108

## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 4.1 : Synthèse des résultats de magnétométrie statique sur les réseaux de nanofils bicouches. $H_{\text{eff}}$ par VSM est obtenu avec les pentes à $M = 0$ . La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ $400 \times 400$ nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées. ....	77
Tableau 4.2 : Synthèse des résultats de magnétométrie statique sur les réseaux de nanofils tricouches. $H_{\text{eff}}$ par VSM est obtenu avec les pentes à $M = 0$ . La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ $400 \times 400$ nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées. ....	82
Tableau 4.3 : Synthèse des résultats de résonance ferromagnétiques sur les réseaux de nanofils bicouches. Le champ effectif $H_{\text{eff}}$ et le facteur $g$ sont les deux paramètres expérimentaux déterminés à l'aide de l'Éq. (4.2). La taille du réseau utilisée dans le modèle est de 200 (environ $400 \times 400$ nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées. ....	89
Tableau 4.4 : Synthèse des résultats de résonance ferromagnétiques sur les réseaux de nanofils tricouches. Le champ effectif $H_{\text{eff}}$ et le facteur $g$ sont les deux paramètres expérimentaux déterminés à l'aide de l'Éq. (4.2). La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ $400 \times 400$ nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées. ....	93
Tableau 4.5 : Champ effectif $H_{\text{eff}}$ calculé avec le modèle d'anisotropie effective. La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ $400 \times 400$ nanofils). ....	98

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1: Nanofils ferromagnétiques multicouches dans une fine membrane d'alumine. Les couches foncées représentent les métaux ferromagnétiques, séparés par les couches pâles, représentant les métaux non magnétiques. ....	2
Figure 2.1: Schéma simplifié des étapes principales de la fabrication d'une membrane d'alumine. ....	12
Figure 2.2: Membrane d'alumine obtenue par anodization de l'aluminium, et dimension des pores. ....	14
Figure 2.3: Vue de face (gauche) et de dos (droite) de la membrane d'alumine prête pour l'électrodéposition. La surface d'électrodéposition (bleu) mesure ici environ $4 \times 2 \text{ cm}^2$ .....	15
Figure 2.4: Montage expérimental de l'électrodéposition. La solution électrolytique contient les ions qui migrent vers le fond des pores lorsqu'une différence de potentiel négative est appliquée entre l'électrode de travail (ET) et la contre-électrode (CE), par rapport à une électrode de référence (ER). L'appareil utilisé pour effectuer l'électrodéposition est un EG&G Princeton Applied Research model 263.....	16
Figure 2.5: Les deux classes de nanofils multicouches que nous avons étudiées. a) Configuration classique avec alternance régulière de bicouches magnétiques/non-magnétiques (par exemple Ni/Cu, CoFeB/Cu). b) Alternance de tricouches de type magnétique/non-magnétique/magnétique, séparées par une épaisse couche non-magnétique. L'épaisseur $h_{nm2}$ est en général plusieurs fois plus grande que l'épaisseur de la tricouche. ....	19
Figure 2.6: Caractérisation par MEB des nanofils libérés de la membrane. Les mesures par MEB n'ont pas permis de distinguer les différentes couches magnétiques et non-magnétiques, ce qui rend son utilité très limitée. a) CoFeB(10)/Cu(10)/CoFeB(10)/Cu(50) $\times$ 1000 b) CoFeB(10)/Cu(5)/CoFeB(10)/Cu(55) $\times$ 2000. Diamètre = 45 nm. ....	21
Figure 2.7: Mesure MEB en coupe transverse d'une couche d'alumine contenant des nanofils. ....	21
Figure 2.8: Mesures MET des nanofils multicouches libérés de leur membrane avec les épaisseurs ciblées suivantes: a) CoFeB(50)/Cu(50) $\times$	154

b)CoFeB(10)/Cu(10)/CoFeB(10)/Cu(50)  $\times$  1000 c)CoFeB(10)/Cu(5)/CoFeB(10)/Cu(55)  $\times$  2000 d)CoFeB(10)/Cu(10)/CoFeB(10)/Cu(75)  $\times$  100. Le diamètre des nanofils est d'environ de 45 nm.....24

Figure 2.9: Spectres EDS sur des échantillons de nanofils en configurations bicouches et tricouches: CoFeB(50)/Cu(10) $\times$ 500 (gauche), CoFeB(50)/Cu(50) $\times$ 154 (sup. droit) CoFeB(10)/Cu(10)/CoFeB(10)/Cu(75)  $\times$  100 (inf. droit). Les mesures EDS à gauche sont la gracieuseté de Prof. Karen Kavanagh, Université Simon Fraser. Diamètre = 45 nm. ....26

Figure 3.1 : Système de coordonnées utilisé et dimensions caractéristiques du réseau de nanofils multicouches dans notre modélisation. L'épaisseur de la membrane est de l'ordre de 200  $\mu$ m alors que les nanofils sont d'une longueur de l'ordre de 30-50  $\mu$ m dans notre cas. ....35

Figure 3.2 : Système de nanofils tricouches comme la superposition de deux systèmes bicouches. ....38

Figure 3.3 : Forme de  $N_{OOP}$  en fonction du facteur de forme des couches ferromagnétiques  $c$  pour les trois développements proposés: cylindre (3.23), ellipse (3.28), approximation (3.29).....45

Figure 3.4 : Forme de la courbe de l'Éq.(3.31) en fonction du paramètre  $s$ . ....46

Figure 3.5 : Rappel des dimensions caractéristiques des nanofils tricouches. ....55

Figure 3.6 : (Gauche) Facteur de désaimantation normalisé interfils en fonction du nombre de nanofils considéré dans le réseau, calculé avec l'Éq. (3.55). (Droite) Champ effectif normalisé calculé à l'aide de l'Éq. (3.55) et en adaptant  $N_{inter}$  pour un réseau fini.  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ ,  $N = 300$ . ....57

Figure 3.7 : Effet des interactions dipolaires en nanofils voisins selon la direction du champ magnétique pour les configurations IP et OOP.....58

Figure 3.8 : Champ effectif normalisé en fonction de la taille de l'échantillon en utilisant les expressions numériques. La taille est exprimée ici en nombre de nanofils sur un segment à partir du centre du réseau jusqu'à sa limite. Par exemple, pour une taille de 200 nanofils, le nombre total de nanofils correspond à environ 400 $\times$ 400.  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ ,  $N = 300$ . ....59

- Figure 3.9 : Champ effectif normalisé en fonction du nombre de nombre de tricouches obtenu par l'Éq. (3.55) (gauche) et par calcul numérique (droite). Étendue du réseau = 200 nanofils le nombre total de nanofils correspond à environ 400×400.  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ . .....60
- Figure 3.10 : Champ effectif normalisé en fonction des facteurs géométriques des couches ferromagnétiques, obtenu par l'Éq. (3.55).  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ . .....61
- Figure 3.11 : Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur des couches ferromagnétique pour les nanofils tricouches. Étendue du réseau = 200 nanofils le nombre total de nanofils correspond à environ 400×400.  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ ,  $N = 300$ . .....62
- Figure 3.12 : (Gauche) Facteurs de désaimantation  $N_{12}$  et  $N_{\text{intra}}$  en fonction de l'épaisseur  $h_{\text{nm}1}$  de Cu. (Droite) Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur  $h_{\text{nm}1}$ , obtenu par l'Éq. (3.55).  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ . .....63
- Figure 3.13 : Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur des couches non-magnétiques intercalaires ( $h_{\text{nm}1}$ ) pour les nanofils tricouches. Étendue du réseau = 200 nanofils le nombre total de nanofils correspond à environ 400×400.  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ . .....64
- Figure 3.14 : (Gauche) Facteurs de désaimantation  $N_{12}$  et  $N_{\text{intra}}$  en fonction de l'épaisseur  $h_{\text{nm}2}$  de Cu. (Droite) Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur  $h_{\text{nm}2}$ , obtenu par l'Éq. (3.55).  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ . .....65
- Figure 4.1 : Courbe d'hystérésis typique de l'aimantation en fonction du champ magnétique avec la définition des principales grandeurs la caractérisant: l'aimantation rémanente ( $M_r$ ) à saturation ( $M_s$ ), le champ coercitif ( $H_c$ ) et de saturation ( $H_s$ ). .....69
- Figure 4.2 : Schéma simplifié du principe de la mesure par VSM. L'électroaimant (1) produit un champ magnétique homogène entre ses pôles. L'échantillon (2) est fixé à la tige (3) et vibre à une fréquence  $\omega$ . La tension induite dans les bobines de détection (4) est analysé par le système et le contrôle des variables s'effectue par un logiciel (5). .....70
- Figure 4.3 : Rappel des conventions sur les deux directions principales d'anisotropie. La direction IP représente une direction quelconque dans le plan de la couche alors que OOP représente la direction de l'axe des nanofils. ....71

- Figure 4.4 : Courbes d'hystérésis dans le cadre du modèle de champ moyen.....72
- Figure 4.5 : Dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils bicouches obtenus expérimentalement. ....73
- Figure 4.6 : Aimantation normalisée en fonction du champ magnétique ( $4\pi 10^{-3}$  Oe = 1 A/m) de quatre réseaux de nanofils bicouches mesurées par VSM (directions du champ IP et OOP). Les épaisseurs ciblées des couches de CoFeB et de Cu sont indiquées en encadré pour chaque courbe. L'aimantation est normalisée par la valeur d'aimantation au champ maximum ( $2T = 20$  kOe). Nous avons ici  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm. ....74
- Figure 4.7 : (Gauche) Champ coercitif en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux bicouches.  $0^\circ =$  OOP et  $90^\circ =$  IP. (Droite) Aimantation rémanente en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux bicouches.  $0^\circ =$  OOP et  $90^\circ =$  IP. (AA : **5/5**  $\times$  368) ; (AB : **10/10**  $\times$  500) ; (AC : **50/10**  $\times$  500) ; (Bi1 : **50/50**  $\times$  154).  $B = 1$  T =  $\mu_0 \cdot 10$  kOe ,  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm. ( $4\pi 10^{-3}$  Oe = 1 A/m) .....76
- Figure 4.8 : Dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils tricouches obtenus expérimentalement. ....79
- Figure 4.9 : Aimantation normalisée en fonction du champ magnétique (1 kOe = 0,1 T) de quatre réseaux de nanofils tricouches mesurées par VSM (directions du champ IP et OOP). Les épaisseurs ciblées des couches de CoFeB et de Cu sont indiquées en encadré pour chaque courbe avec comme nomenclature la suivante:  $\mathbf{h_m}/h_{nm1}/\mathbf{h_m}/h_{nm2} = \mathbf{CoFeB(h_m)}/\mathbf{Cu(h_{nm1})}/\mathbf{CoFeB(h_m)}/\mathbf{Cu(h_{nm2})}$ . L'aimantation est normalisée par la valeur d'aimantation au champ maximum ( $2T = 20$  kOe).  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm. ....80
- Figure 4.10 : (Gauche) Champ coercitif en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux bicouches. [ $0^\circ =$  OOP et  $90^\circ =$  IP. (Droite) Aimantation rémanente en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux tricouches.  $0^\circ =$  OOP et  $90^\circ =$  IP. (AD : **10/10/10/100**  $\times$  100) ; (TR5 : **10/10/10/75**  $\times$  100) ; (TR6 : **10/5/10/75**  $\times$  100) ; (TR10 : **20/5/20/100**  $\times$  500).  $B = 1$  T =  $\mu_0 \cdot 10$  kOe,  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm. ( $4\pi 10^{-3}$  Oe = 1 A/m).81
- Figure 4.11 : Schéma du montage de résonance ferromagnétique. L'électroaimant (1) produit un champ magnétique homogène entre ses pôles. La cavité résonante cylindrique (sur la figure,

l'axe du cylindre sort de la page) (2) contient l'échantillon de nanofils et est reliée à un guide d'onde. La sonde à effet Hall (3) permet de lire le champ magnétique et est reliée à un gaussmètre (4). Les ondes électromagnétiques de fréquence  $\omega$  sont générées par l'analyseur de réseau vectoriel (5) renvoyées à celui-ci après interactions avec l'échantillon (6). Un moteur (7) permet d'effectuer automatiquement la rotation de l'échantillon selon l'axe du porte-échantillon.....83

- Figure 4.12 : Mesures FMR sur l'échantillon AA (**5/5**  $\times$  368) à 31 GHz. (Haut) Absorption électromagnétique en fonction du champ magnétique pour les deux configurations IP/OOP. (Gauche) Champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué. Les carrés représentent les mesures expérimentales et la courbe continue obtenue par l'Éq. (4.2). (Droite) Écart entre mesures expérimentales et le modèle.  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm .....86
- Figure 4.13 : Mesures FMR sur l'échantillon AB (**10/10**  $\times$  500) à 31 GHz. ....86
- Figure 4.14 : Mesures FMR sur l'échantillon AC (**50/10**  $\times$  500) à 24 GHz. ....87
- Figure 4.15 : Mesures FMR sur l'échantillon AC (**50/10**  $\times$  500) à 31 GHz. ....87
- Figure 4.16 : Mesures FMR sur l'échantillon Bi1 (**50/50**  $\times$  154) à 31 GHz.....87
- Figure 4.17: Mesures FMR sur l'échantillon AD (**10/10/10/100**  $\times$  100) à 31 GHz. (Gauche) Champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué. Les carrés représentent les mesures expérimentales et la courbe continue obtenue par l'Éq. (4.2). (Droite) Écart entre mesures expérimentales et le modèle.  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm .....90
- Figure 4.18 : Mesures FMR sur l'échantillon TR6 (**10/5/10/75**  $\times$  100) à 31 GHz.....90
- Figure 4.19 : Mesures FMR sur l'échantillon TR5 (**10/10/10/75**  $\times$  100) à 31 GHz.....91
- Figure 4.20 : Mesures FMR sur l'échantillon TR5 (**10/10/10/75**  $\times$  100) à 38 GHz.....91
- Figure 4.21 : Mesures FMR sur l'échantillon TR10 (**20/5/20/100**  $\times$  500) à 17 GHz. Absorption électromagnétique en fonction du champ magnétique pour les deux configurations IP/OOP.  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm. ....91
- Figure 4.22 : Dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils constituant les réseaux de nanofils isotropes.....94

Figure 4.23 : (Haut) Hystérésis pour les deux directions principales des échantillons TR3 et TR8.

(Bas) Champ coercitif et aimantation rémanente en fonction de l'angle du champ magnétique pour les deux échantillons. ....96

Figure 4.24 : Mesures FMR sur l'échantillon TR3 ( $10/5/10/55 \times 2000$ ) à 24 GHz et 31 GHz.

(Gauche) Absorption électromagnétique en fonction du champ magnétique pour les deux configurations IP/OOP. (Droite) Champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué par rapport aux nanofils. ....97

Figure 4.25 : Mesures VSM sur un réseau de nanofils tricouches affichant une rémanence constante et une coercivité variable. ....100

## LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

IP	<i>In-plane</i> (dans le plan)
FMR	<i>Ferromagnetic resonance</i> (résonance ferromagnétique)
GMR	<i>Giant magnetoresistance</i> (magnétorésistance géante)
MEB	Microscope électronique à balayage
MET	Microscope électronique en transmission
OOP	<i>Out-of-plane</i> (hors-plan)
VNA	<i>Vector Network Analyzer</i> (analyseur de réseau vectoriel)
VSM	<i>Vibrating sample magnetometer</i> (magnétomètre à échantillon vibrant)

## LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A	INFLUENCE DU PH SUR LES PROPRIÉTÉS DU RÉSEAU DE NANOFILS MULTICOUCHES.....	110
ANNEXE B	COMPOSITION DE LA SOLUTION ÉLECTROLYTIQUES DU COFEB.....	111
ANNEXE C	DÉTAILS DE FABRICATION DE NANOFILS.....	112
ANNEXE D	DÉRIVÉES SECONDES DE L'ÉNERGIE MAGNÉTIQUE D'ANISOTROPIE .....	114
ANNEXE E	ÉNERGIE ET CHAMP EFFECTIF POUR DES AIMANTATIONS ANTIPARALLÈLES .....	115

## CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Les nanotechnologies ont généré depuis les années 80 des innovations dans virtuellement tous les domaines: électronique, informatique, cosmétiques, revêtements, biologie, médecine, etc. L'exemple le plus évident est le développement effréné de la puissance des microprocesseurs et de la capacité de stockage des disques durs, fruit de la miniaturisation des composants formant ces dispositifs. La matière se comporte en général très différemment lorsqu'une ou plusieurs des dimensions caractéristiques de sa structure sont à l'échelle nanométrique (typiquement 1-100 nm); les effets quantiques et de surface y prennent beaucoup plus d'importance qu'à l'échelle macroscopique.

Dans le domaine du magnétisme et des matériaux magnétiques, plusieurs avancées ont été réalisées dans les vingt dernières années. L'une d'elle consiste en la découverte en 1988 du phénomène de la magnétorésistance géante (GMR) dans des structures magnétiques multicouches (Fert et al., 1988; Grünberg et al., 1989). Cela a d'ailleurs valu la remise du prix Nobel aux deux chercheurs l'ayant découvert de façon indépendante: Albert Fert et Peter Grünberg. Il a été possible d'observer ce phénomène en alternant des couches minces métalliques magnétiques et non-magnétiques dont les épaisseurs se situent autour du nanomètre.

Il existe plusieurs classes de nanostructures magnétiques affichant chacune des propriétés spécifiques (on peut consulter par exemple Shi *et al.*, 2002, pour un survol). Dans le cadre de nos activités de recherche au sein du Laboratoire de Magnétisme de l'École Polytechnique Montréal, nous étudions le comportement d'une classe de matériaux appelés *nanofils ferromagnétiques multicouches*. Plus particulièrement, nous étudions les nanofils ferromagnétiques électrodéposés dans une membrane nanoporeuse d'alumine. Les nanofils sont disposés en réseau dans une fine membrane d'alumine tel que montré à la figure 1.1. D'un point de vue ingénierie, ces matériaux jouissent d'une grande liberté de design de par la possibilité de contrôler plusieurs de leurs paramètres:

- Longueur des nanofils: quelques nanomètres jusqu'à 200  $\mu\text{m}$
- Diamètre des nanofils: 10 à 150 nm
- Distance inter-fil: 30 à 300 nm
- Composition: métaux magnétiques ou non-magnétiques, alliages
- Structure multicouche avec épaisseurs modulables

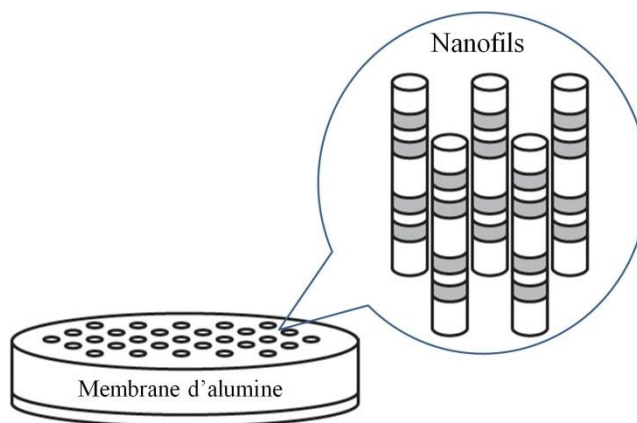


Figure 1.1: Nanofils ferromagnétiques multicouches dans une fine membrane d'alumine. Les couches foncées représentent les métaux ferromagnétiques, séparés par les couches pâles, représentant les métaux non magnétiques.

Ces nanofils ferromagnétiques multicouches sont d'un grand intérêt autant pour leurs propriétés fondamentales que pour leur potentiel technologique. Illustrons ce propos par l'exemple de la GMR mentionnée plus haut. La magnétorésistance géante consiste en une grande variation de résistance électrique d'une structure magnétique multicouche selon le champ magnétique qu'on lui applique. Ces structures sont typiquement composées de plusieurs alternances de couches minces ferromagnétiques (Co, Fe, Ni, alliages, etc.) et non-magnétiques (Cu, Au, Cr, etc.) avec des épaisseurs de l'ordre de quelques nanomètres. Une plus faible résistance au courant électrique est observée lorsque les moments magnétiques des couches sont tous alignés dans le même sens, alors qu'une résistance plus grande est observée à bas champ lorsque les moments sont antiparallèles. L'explication des mécanismes derrière le phénomène de la GMR dépasse le cadre de ce mémoire et on pourra consulter les nombreuses ressources sur le sujet, par exemple Thompson (2008) et Tsymbal *et al.* (2001). Suite à la découverte de la GMR,

les chercheurs effectuaient leurs expériences dans un régime CIP (*current in-plane*), c'est-à-dire que la direction du courant était parallèle aux couches. Le régime CPP (*current perpendicular-to-plane*), dans lequel le courant traverse perpendiculairement les couches, est plus difficile à appliquer due à la très faible résistance électrique des couches minces pour des courants perpendiculaires à la surface des couches. Il est possible de surmonter ces difficultés avec des contacts supraconducteurs ou par des techniques de lithographie, mais les nanofils multicouches sont vite devenus un système naturel pour effectuer ce type de mesure. Leurs avantages principaux reposent sur leurs dimensions latérales réduites, la possibilité d'alterner un nombre très élevé de couches, et leur facilité de fabrication.

Dans cette introduction, nous effectuerons en premier lieu un bref état de l'art sur le développement des nanofils ferromagnétiques multicouches. Nous énoncerons ensuite notre question de recherche et le but poursuivi par ces travaux. Nous établirons enfin les objectifs spécifiques de cette étude

## **État de la question sur les nanofils ferromagnétiques multicouches**

L'électrodéposition de réseaux de nanofils non-magnétiques a été rapportée pour la première fois en 1970 par Possin (1970) dans des membranes de mica. Whitney et al. (1993) ont été les premiers à publier sur la fabrication de nanofils ferromagnétiques homogènes (de composition unique) dans une membrane poreuse. Très rapidement des groupes se sont intéressés à adapter la technique pour des réseaux de nanofils ferromagnétiques multicouches, motivés par leur intérêt dans l'étude de la GMR (Piroux *et al.*, 1994; Blondel et al., 1994, Liu *et al.*, 1995). Ce développement a été rendu possible notamment par la compréhension que des multicouches métalliques de type  $A_xB_{1-x}/B$  avec  $x \approx 0,01$  pouvaient être électrodéposées si la différence de potentiel d'équilibre des métaux A et B était suffisamment large (généralement plus grande que 0,4 V) et si la concentration du métal le plus noble était très faible, donc si  $[A^{n+}] \ll [B^{m+}]$  (Sun *et al.*, 2005). Une limitation de cette technique est qu'elle ne fonctionne pas pour tous les couples de métaux A et B. Néanmoins, des groupes de recherche ont été en mesure de varier considérablement la composition des couches, synthétisant par exemple des nanofils

multicouches de Co/Cu (Piroux *et al.*, 1994), Ni/Cu (Chen *et al.*, 2006), NiFe/Cu (Dubois *et al.*, 1997), Fe/ Cr (Velez et Chang, 2002), Ni/Pt (Liang *et al.*, 2005), CoPt/Pt (Peng *et al.*, 2007), Co/Ag (Valizadeh *et al.*, 2001), Fe/Pt (Wang *et al.*, 2006), et plus encore (Sun *et al.*, 2005). En plus de démontrer la synthèse de ces multicouches, des efforts importants ont aussi été entrepris pour caractériser leurs structures cristallines, leurs compositions chimiques, et leurs propriétés magnétiques et de transport (Fert *et al.*, 1999; Sun *et al.*, 2005).

En plus de la GMR en régime CPP, le développement des nanofils ferromagnétiques multicouches a permis d'étudier plusieurs phénomènes physiques intéressants. Gravier *et al.* (2004) ont par exemple étudié le transport calorifique dépendant du spin dans des nanofils multicouches de Co/Cu. Doudin *et al.* (1997) ont étudié la magnétorésistance dans les jonctions tunnels, c'est-à-dire lorsque les couches non-magnétiques intercalaires sont des oxydes au lieu de métaux, ce qui donne lieu à un transport tunnel dépendant des orientations relatives des couches ferromagnétiques. Un autre phénomène qui a grandement attiré l'attention des chercheurs ces dernières années est le couple induit sur l'aimantation d'une couche lorsqu'elle est parcourue par un courant polarisé en spin (Berger, 1996; Slonczewski, 1996). Cet effet est nommé le *spin transfert torque* (STT) en anglais et les nanofils multicouches électrodéposés constituent un moyen maintenant assez aisée d'étudier ce phénomène, surtout comparé aux techniques très dispendieuses de lithographie (Blon *et al.* 2007; Murè *et al.*, 2009).

Il est évident que plusieurs applications sont envisagées pour motiver tous ces développements, plus particulièrement dans les domaines de la magnéto-électronique et des dispositifs micro-ondes. L'exploitation du STT semble être une voie intéressante pour produire des signaux micro-ondes à l'aide de courants continus. Par exemple, Mourachkine *et al.* (2008) ont développé un dispositif magnétique à base de nanofils multicouches (CoCu/Cu) qui pourrait être utilisé comme détecteur micro-onde, oscillateur micro-onde, ou d'unité MRAM fonctionnant à champ magnétique nul.

## Magnéto-transport dans le régime hyperfréquence

La question du transport électronique dans les nanofils multicouches a été bien couverte théoriquement et expérimentalement par les divers travaux cités plus haut. Néanmoins, ce phénomène a été presque exclusivement étudié pour des courants continus ou alternatifs à basses fréquences. Un champ encore très peu exploré est le magnéto-transport en régime hyperfréquence, soit le transport d'électrons de spin non nul à des fréquences de l'ordre du gigahertz. Ce phénomène a été assez peu étudié dans les couches minces (Rinkevich *et al.*, 2003; Rausch *et al.*, 1998; Krebs *et al.*, 1991; Kuanr *et al.*, 1996) et à notre connaissance n'est pas bien compris dans les nanofils multicouches. Nos travaux permettront d'établir une base de compréhension pour attaquer le magnéto-transport hyperfréquence dans une suite éventuelle à ce projet.

Une extension possible de ce sujet est l'ajustement de la constante diélectrique du réseau par un champ magnétique. En effet, dans le régime micro-onde, la permittivité d'un métal dépend de sa résistance (DC) et de la fréquence du courant hyperfréquence. Il serait donc en théorie possible d'ajuster la permittivité d'un matériau propice à l'effet GMR en variant le champ magnétique, lorsque la fréquence du courant atteint le régime micro-onde. Ce phénomène est dans la lignée directe des travaux effectués ces dernières années sur les métamatériaux micro-ondes à base de nanofils ferromagnétiques, notamment par Spiegel *et al.* (2009), Kuanr *et al.* (2009) et Carignan *et al.* (2010). Le contrôle de la permittivité par le champ magnétique permettrait d'ajuster la relation de dispersion du matériau et devient intéressant pour des applications de senseurs et de dispositifs micro-ondes ajustables. Néanmoins, ce sujet est encore loin de nos préoccupations actuelles.

Dans le cadre de nos travaux, nous utilisons un alliage ferromagnétique de  $\text{Co}_{94}\text{Fe}_5\text{B}_1$ , développé par Ciureanu *et al.* (2005). Ce matériau est à la base des divers travaux menés par notre groupe sur les nanofils ferromagnétiques. L'alliage de CoFeB est très intéressant pour des applications micro-ondes pour plusieurs raisons: une grande aimantation à saturation, un

comportement doux par rapport au champ magnétique, une haute température de Curie, et une structure amorphe (Ciureanu *et al.*, 2005). Les nanofils que nous avons étudiés sont donc constitués d'alternances de couches de CoFeB et de couches de Cu pour l'élément non-magnétique. Cette couche de Cu joue le rôle d'espacer les couches ferromagnétiques entre elles. Cette couche d'espacement est toujours métallique dans le cadre de ces travaux. Cela est dû à la nature même du procédé d'électrodéposition ne permettant de ne déposer que des couches métalliques. Il est aussi important d'obtenir des nanofils métalliques dans une perspective de mesures de transport électronique (ce que nous ne traitons pas ici).

La compréhension du comportement magnétique des réseaux de nanofils multicouches est non seulement utile d'un point de vue théorique, elle permet également de prédire à l'avance le comportement du réseau en fonction de plusieurs paramètres d'entrée, ceux-ci dépendant du dispositif à élaborer. Plusieurs propriétés définissent le comportement global du réseau de nanofils: champ coercitif, aimantation rémanente, anisotropie magnétique, champs et fréquences de résonance, aimantation à saturation, pertes micro-ondes. Ces propriétés sont modulées par les paramètres structuraux et géométriques du réseau. Carignan (2006) a démontré qu'il était possible d'ajuster l'anisotropie effective (englobant toutes les contributions anisotropes du réseau) d'un réseau de nanofils multicouche en variant le ratio des épaisseurs des couches magnétiques et non magnétiques. Il a aussi développé un modèle pour expliquer cette anisotropie effective à l'aide des interactions dipolaires entre les couches ferromagnétiques. Les résultats du modèle sont en bon accord avec les résultats expérimentaux pour ce qui est des nanofils homogènes (une seule composition ferromagnétique), mais des déviations importantes sont observées pour les nanofils multicouches. Nous avons donc tenté de pousser un peu plus loin la compréhension du comportement magnétique des réseaux de nanofils multicouches de CoFeB/Cu afin d'obtenir des prédictions plus fiables lors du design de dispositifs.

Pour ce faire, nous avons développé une structure tricouche dans les nanofils, c'est-à-dire que les nanofils sont composés d'alternances de tricouches CoFeB/Cu/CoFeB séparées par d'épaisses couches de Cu. Nous avons fait l'hypothèse que cette structure permettait de découpler les interactions dipolaires entre les tricouches, ce qui faciliterait en principe l'interprétation des

résultats expérimentaux par rapport aux prédictions du modèle. Nous avons aussi adapté le modèle pour le cas de tricouches, ce qui ajoute un degré de liberté supplémentaire par rapport aux nanofils multicouches traditionnels. Enfin, cette structure tricouche pourrait être plus encline à démontrer un effet GMR dans une suite du projet, parce qu'il serait en principe plus aisé dans ce cas d'alterner entre une configuration d'aimantations parallèles et antiparallèles (donc de passer d'une basse résistance à une haute résistance). Nous avons également effectué des mesures expérimentales en magnétométrie statique (courbe d'hystérésis) et dynamique (résonance ferromagnétique). Ces mesures nous ont permis de comprendre l'influence des paramètres géométriques du réseau (notamment les épaisseurs des couches) sur ses propriétés magnétiques.

Enfin, une application de grand intérêt pour ces réseaux est de pouvoir produire des réseaux de nanofils dont le comportement magnétique est isotrope. Cela reviendrait à avoir des couches minces ferromagnétiques isotropes, ce qui ne serait pas possible avec du CoFeB massif à cause de l'anisotropie de forme. Ce type de matériau isotrope pourrait par exemple être utilisé dans des senseurs ou des dispositifs qui sont excités magnétiquement dans plusieurs directions et qui doivent se comporter identiquement dans toutes les directions d'application du champ magnétique.

## **Objectifs de recherche et plan du mémoire**

Parmi les objectifs pertinents à l'étude des nanofils multicouches, nous avons choisi de nous concentrer sur les suivants dans le cadre de ce mémoire:

- 1) Maîtriser la fabrication des réseaux de nanofils ferromagnétiques multicouches**
- 2) Modéliser et prédire l'anisotropie de réseaux de nanofils tricouches en fonction de paramètres géométriques.**
- 3) Explorer les propriétés magnétiques statiques et dynamiques de ces réseaux et les confronter aux prédictions du modèle.**

#### **4) Démontrer la faisabilité expérimentale de réseaux de nanofils magnétiquement isotropes**

Le chapitre 2 traite du procédé de fabrication de la membrane d'alumine et de l'électrodéposition des nanofils multicouches (CoFeB/Cu et Ni/Cu). Nous avons synthétisé des nanofils multicouches de deux classes de géométrie différentes: bicouches et tricouches. Nous avons ensuite caractérisé leur structure par deux techniques de microscopie électronique, l'une à balayage (MEB) et l'autre en transmission (MET).

Le chapitre 3 explique le modèle d'anisotropie effective basé sur les interactions dipolaires entre les couches ferromagnétiques des nanofils. Ce modèle est adapté pour des nanofils tricouches à partir des travaux de Carignan (2006). Nous tenterons d'en extraire des prédictions sur le comportement de l'anisotropie effective du réseau en fonction de divers paramètres géométriques. Ce chapitre inclue aussi le développement d'un modèle de résonance ferromagnétique dans ces structures, ce qui nous sera utile pour interpréter les résultats expérimentaux.

Le chapitre 4 présente les résultats expérimentaux de magnétométrie statique et dynamique sur les réseaux de nanofils multicouche. Nous dresserons des tendances sur le comportement de l'anisotropie effective du réseau et sur ses propriétés magnétiques en fonction des différentes géométries étudiées. Enfin nous présenterons la démonstration expérimentale qu'il est possible de fabriquer des réseaux de nanofils multicouches magnétiquement isotropes.

Ce mémoire ne reflète qu'une partie de tout le travail exploratoire sur ces matériaux que nous avons effectué dans notre laboratoire durant les deux années de ma maîtrise. Certains aspects ont été laissés de côté par soucis de rester le plus concis possible et aussi parce que nous n'avons pas de résultats assez solides pour les intégrer dans ce mémoire. Nous avons par exemple tenté de mesurer le magnéto-transport dans les réseaux de nanofils, étudié l'effet du pH de l'électrodéposition sur l'anisotropie effective, mesuré la réponse magnéto-optique des nanofils multicouches, et tenté de faire le montage d'une expérience de GMR micro-onde. Cela démontre

l'étendue du champ des possibilités offert dans l'étude des nanofils multicouches et le travail qui reste à effectuer pour exploiter au maximum leurs propriétés uniques.

## CHAPITRE 2 FABRICATION ET CARACTÉRISATION STRUCTURELLE

Un des objectifs de ce projet est de maîtriser la fabrication de ces réseaux de nanofils multicouches, notamment par le contrôle de l'épaisseur des couches et par leur qualité. Ce chapitre présente les méthodes expérimentales utilisées pour fabriquer et caractériser les réseaux de nanofils. La section 2.1 présente la fabrication des membranes nanoporeuses d'alumine qui joue le rôle de matrice. La croissance des nanofils par un processus d'électrodéposition est présentée à la section 2.2. Enfin, la caractérisation structurale des membranes d'alumine et des nanofils par microscopie électronique à balayage (MEB) et microscopie électronique en transmission (MET) est présentée à la section 2.3. Nous discuterons ce que ces résultats impliquent d'un point de vue général à la section 2.4.

### 2.1 Fabrication des membranes nanoporeuses

L'étape de base du procédé de fabrication consiste à synthétiser une membrane nanoporeuse pouvant ensuite accueillir les nanofils ferromagnétiques par électrodéposition. Ces nanopores sont des colonnes traversant la membrane perpendiculairement à celle-ci. Il existe plusieurs types de membranes poreuses pouvant servir de matrices pour les nanofils magnétiques. On retrouve notamment les suivantes:

- Matériaux poreux par *nuclear track etching*
- Membranes de copolymère dibloc
- Alumine poreuse
  - Membranes nanoporeuses obtenues par lithographie interférentielle (Ross et al., 1998)
  - Matériaux nanoporeux obtenus par nanoimpression

La technique du bombardement ionique consiste à bombarder un matériau avec des particules de hautes énergies et ensuite de le soumettre à une gravure chimique qui viendra élargir les zones traversées par les particules. Cette méthode est intéressante pour sa flexibilité quant au

choix de matériau pour la matrice, la taille et la densité des pores, et l'épaisseur de la membrane. Cette technique est typiquement utilisée sur des polymères comme le polycarbonate (PC) et le polyéthylène téréphtalate (PET) ou bien sur des matériaux non-organiques comme le mica. Le désavantage de cette méthode est que la distribution des pores est aléatoire (Sun et al., 2005) et les pores ne sont pas tous alignés entre eux, car ils dépendent de l'angle d'arrivée des ions. De plus, les matériaux polymères possèdent de plus grandes pertes diélectriques aux fréquences micro-ondes (Pozar, 2005).

Un copolymère dibloc est constitué de deux chaînes de polymères, liées entre elles bout-à-bout par des liaisons covalentes. Ce type de polymère peut être auto-assemblé par la non-miscibilité des deux polymères et la ségrégation de l'un dans l'autre permet, selon les fractions volumiques, des réseaux périodiques de sphères, cylindres, et de lamelles. Un procédé pour retirer un des polymères est appliqué par la suite pour ne laisser qu'un polymère nanoporeux. Un désavantage de cette méthode est la gamme d'épaisseur de la membrane, celle-ci étant limitée à moins de 10  $\mu\text{m}$  (Raman & Palmese, 2006).

La fabrication de membranes nanoporeuses par lithographie interférentielle consiste à faire interférer une lumière U.V. avec elle-même de manière à produire un patron d'interférence sur un polymère. Le polymère est ensuite développé, ce qui résulte en un réseau de nanopores dans une matrice polymérique (Ross et al., 1998). Cette technique permet d'obtenir un réseau parfait de nanopores, mais l'épaisseur des membranes est limitée à quelques microns, et nécessite un équipement sophistiqué de lithographie.

La nanoimpression consiste à chauffer et presser une surface polymérique à l'aide d'un moule ayant le négatif de la structure désirée. Le polymère, porté à une température supérieure à sa température de transition vitreuse, devient malléable et conforme la topologie du moule. Il est alors possible d'obtenir une membrane nanoporeuse dont la périodicité est de plusieurs  $\mu\text{m}$ . Cependant, l'épaisseur des membranes nanoporeuses obtenues est limitée à quelques microns.

## Membranes poreuses d'alumine

Les membranes poreuses d'alumine obtenues par anodisation de l'aluminium sont les structures qui nous intéressent dans le cadre de ce projet car elles peuvent être obtenues à faible coût et leur structure géométrique (épaisseur, diamètre et distance inter-pore) peut être contrôlée grâce aux paramètres de croissance de l'alumine. L'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) est formée par l'oxydation anodique d'une plaque d'aluminium. Nous résumons ici les grandes lignes du procédé de fabrication et nous pouvons consulter (Zhao et al., 2007; Jessensky et al., 1998) pour plus de détails quant aux mécanismes physiques derrière cette technique. Les trois grandes étapes sont schématisées à la Figure 2.1.

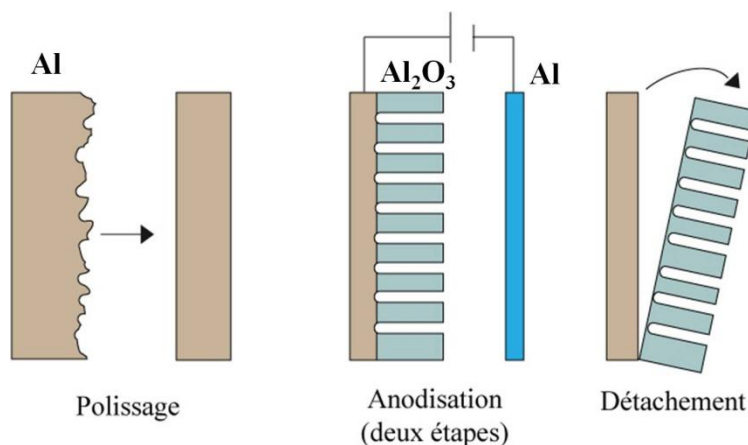


Figure 2.1: Schéma simplifié des étapes principales de la fabrication d'une membrane d'alumine.

La première étape consiste à découper un échantillon d'aluminium de très haute pureté (99,995%) typiquement en forme rectangulaire. La dimension de la surface de l'aluminium est ici de l'ordre de  $15 \text{ cm}^2$ , mais celle-ci n'est limitée que par le bassin d'anodisation. Il s'en suit un polissage d'abord mécanique, puis un électropolissage dans une solution composée d'eau ( $\text{H}_2\text{O}$ ), d'acide phosphorique ( $\text{H}_3\text{PO}_4$ ) et d'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ). Ces étapes de polissages permettent de réduire la rugosité de surface sur l'aluminium, ce paramètre devant être minimisé afin d'obtenir une répartition hexagonale ordonnée des pores (Jessensky et al., 1998).

Après obtention d'une surface suffisamment lisse, une première anodisation est appliquée à l'échantillon. L'anodisation consiste à appliquer une différence de potentiel entre l'échantillon d'aluminium (anode) et une cathode, le tout dans un milieu acide. Des réactions de réduction et d'oxydation se produisent respectivement à la cathode et à l'anode, qui résultent en la formation de l'alumine:

- Cathode:  $2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2$
- Anode:  $\text{Al} = 3\text{e}^- + \text{Al}^{3+}$  et  $2\text{Al}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Al}_2\text{O}_3 + 6\text{H}^+$
- Bilan:  $2\text{Al} + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Al}_2\text{O}_3 + 3\text{H}_2$

Cette première anodisation permet de générer des pores sur l'alumine selon divers mécanismes bien expliqués ailleurs (Huang et al., 2007; Jessensky et al., 1998; Li et al., 1998). Cette première couche d'alumine poreuse est éliminée par un procédé de gravure (avec une solution de 6%  $\text{H}_3\text{PO}_4$  et 1.8%  $\text{H}_2\text{CrO}_4$ ) et une deuxième anodisation pendant plus de 24 heures est appliquée, ce qui a pour effet de faire croître les pores perpendiculairement à la surface d'alumine, aux cavités laissés par les pores suite à la première anodisation. Cette technique d'anodisation en deux étapes a été démontrée par (Masuda & Fukuda, 1995) pour produire un arrangement des pores plus régulier qu'avec une seule anodisation.

La dernière étape consiste à détacher la membrane d'alumine. Pour ce faire, on plonge l'échantillon dans un bain d'acide perchlorique ( $\text{HClO}_4$ ) et on l'expose brièvement (2-3 secondes) à un potentiel de 45 V par rapport à une contre-électrode d'aluminium. Ces conditions permettent non seulement de détacher la membrane mais également d'obtenir des pores traversant complètement l'alumine (Zhao et al., 2007). La Figure 2.2 montre une vue de dessus d'une membrane d'alumine obtenue par anodisation de l'aluminium, observée par microscopie électronique à balayage (MEB).

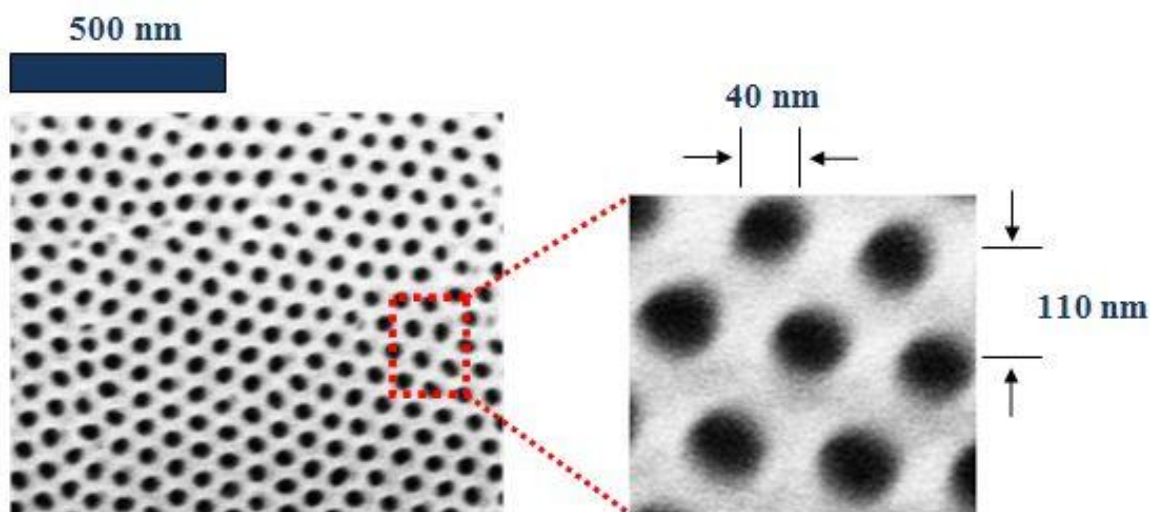


Figure 2.2: Membrane d'alumine obtenue par anodization de l'aluminium, et dimension des pores.

En ajustant les paramètres de croissance (potentiel et durée d'anodisation, type d'acide), il est possible de contrôler l'épaisseur de la couche d'alumine, le diamètre des pores, leur espacement, et leur arrangement. Par exemple, pour nos échantillons de  $(41 \pm 4)$  nm de diamètre et  $(111 \pm 8)$  nm de distance inter-pore, nous appliquons un potentiel de 40 V pendant 4 jours, dans un bain d'acide oxalique ( $C_2H_2O_4$ ). Pour comprendre le rôle de ces paramètres sur la géométrie de la membrane et de ses pores, on pourra consulter (Jessensky et al., 1998).

## 2.2 Électrodéposition des nanofils

L'électrodéposition consiste en la déposition d'ions sur une électrode portée à un certain potentiel par rapport à une électrode de référence. Ces ions proviennent d'une solution électrolytique que nous avons préparée en laboratoire. Dans notre cas, nous avons préparé une solution permettant le dépôt de nanofils multicouches de CoFeB/Cu et Ni/Cu. La composition de cette solution est présentée en annexe B.

La Figure 2.3 montre la préparation d'une membrane d'alumine pour l'électrodéposition. Un prédépôt d'une couche de 15 nm de Ti est appliqué sur un côté de la membrane, cette couche servant d'adhésion pour une couche d'or (Au) d'environ 1  $\mu\text{m}$ . Cette couche d'or joue le rôle de cathode dans l'électrodéposition. Un ruban de cuivre est collé à la couche d'or avec de la pâte d'argent dans le but d'établir une connexion électrique. La membrane est ensuite placée sur un substrat de plexiglas, le côté de la couche d'or en contact direct avec le plexiglas. Les bords de la membrane sont attachés au substrat à l'aide de rubans adhésifs. Les bords sont ensuite recouverts de vernis à ongle, ceux-ci protégeant contre l'intrusion de solution (et donc d'ions) par les bords. Le vernis est intéressant pour cette application parce qu'il est peu dispendieux, sèche assez rapidement, est facile d'utilisation et peut se dissoudre aisément avec de l'acétone.



Figure 2.3: Vue de face (gauche) et de dos (droite) de la membrane d'alumine prête pour l'électrodéposition. La surface d'électrodéposition (bleu) mesure ici environ  $4 \times 2 \text{ cm}^2$ .

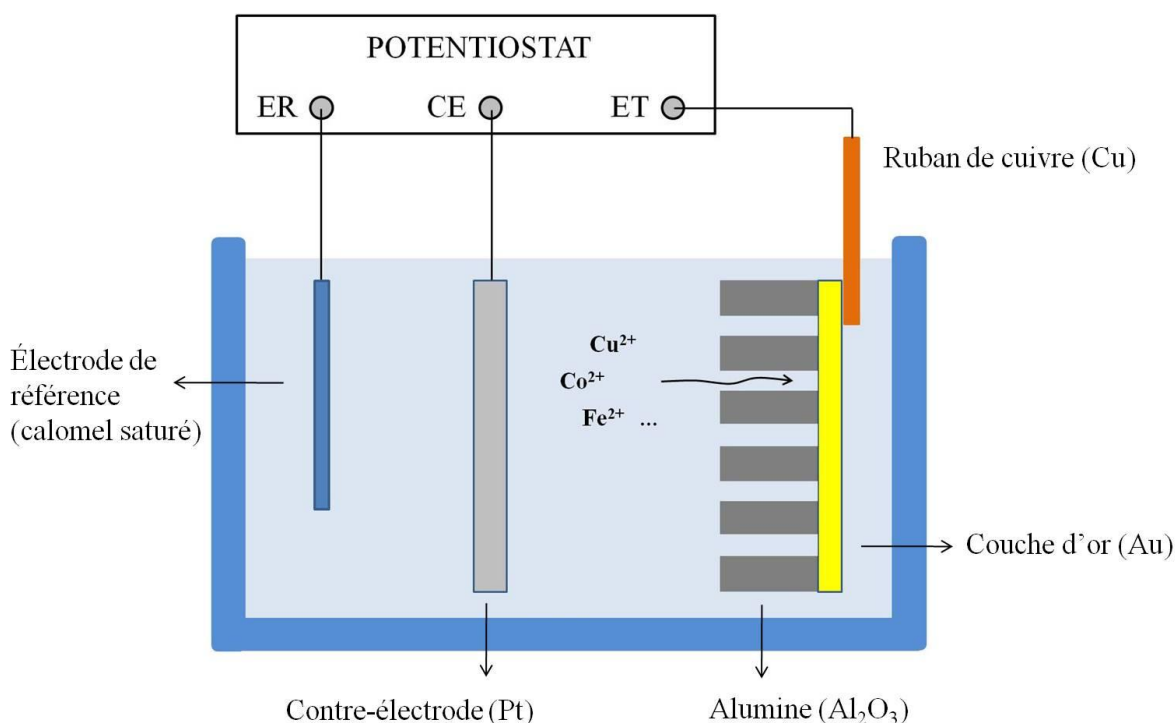


Figure 2.4: Montage expérimental de l'électrodéposition. La solution électrolytique contient les ions qui migrent vers le fond des pores lorsqu'une différence de potentiel négative est appliquée entre l'électrode de travail (ET) et la contre-électrode (CE), par rapport à une électrode de référence (ER). L'appareil utilisé pour effectuer l'électrodéposition est un EG&G Princeton Applied Research model 263.

Le montage expérimental est tel que montré à la Figure 2.4. L'échantillon est l'électrode de travail, l'anode (contre-électrode) est une électrode de platine (Pt), et une électrode de référence de calomel saturée complète la configuration à trois électrodes. Deux classes de nanofils peuvent être électrodéposés dans la membrane d'alumine: les nanofils homogènes et multicouches. L'appareil utilisé pour effectuer l'électrodéposition est un EG&G Princeton Applied Research model 263, pouvant opérer en mode galvanostat (contrôle du courant) ou potentiostat (contrôle du potentiel).

Dans le cadre de ce projet, nous nous sommes concentrés sur les nanofils multicouches, constitués d'alternance de couches ferromagnétiques et non-magnétiques. La solution électrolytique utilisée dans ce cas contient donc à la fois les électrolytes magnétiques (CoFeB) et

non-magnétiques (Cu). La concentration de l'électrolyte non-magnétique dans la solution est en général très faible (1%) afin d'éviter l'inclusion de cuivre (métal plus noble) dans la couche magnétique (métal moins noble). La solution est gardée à température ambiante et à un pH contrôlé (pH 3,5 pour le CoFeB/Cu). Le pH est un paramètre important lors de la fabrication des nanofils. Nous avons observé des changements importants dans l'anisotropie magnétique des réseaux de nanofils en variant le pH de la solution électrolytique (voir annexe A). Nous n'avons pas approfondi la question mais il est possible que le pH puisse avoir une influence sur la structure cristalline des couches ferromagnétiques et ainsi affecter les propriétés magnétiques du réseau.

Comme nous le verrons plus tard, il est important que l'épaisseur des couches soit bien contrôlée au nanomètre près parce qu'elle a une influence notable sur les propriétés magnétiques. Dans ce cas, nous cherchons à contrôler la charge d'électrolytes déposée dans les pores de la membrane, cette charge étant, selon la loi de Faraday, proportionnelle à la quantité de matière déposée. La charge déposée dans tous les pores de la membrane est, pour une seule couche, donnée par:

$$C = \frac{2S_{\text{eff}}hF\rho}{\eta A} \quad (2.1)$$

où  $S_{\text{eff}}$  est la surface effective de déposition,  $h$  l'épaisseur de la couche,  $F$  le nombre de Faraday (96500 Coulombs),  $\rho$  la masse volumique de la couche,  $A$  sa masse atomique, et  $\eta$  le rendement de déposition.  $S_{\text{eff}}$  est définie par  $S_{\text{eff}} = SP$ , où  $S$  est la surface de la membrane d'alumine et  $P$  la porosité de la membrane (rapport de la surface cumulée des pores sur la surface totale de la membrane). Dans le cas d'un alliage (dans notre cas CoFeB), on calcule la moyenne pondérée des masses volumiques et atomiques selon les proportions  $x_i$  de chaque atome  $i$  dans la phase solide de l'alliage (par exemple notre alliage de CoFeB contient 94% massique de Co, 5% de Fe et 1% de B):

$$\rho_{\text{alliage}} = \sum_i x_i \rho_i \quad A_{\text{alliage}} = \sum_i x_i A_i \quad (2.2)$$

L'Éq. (2.1) donnant la charge déposée en fonction de l'épaisseur de la couche est, sans le terme  $\eta$ , pour un transfert parfait des ions vers les pores. Ce n'est toutefois pas le cas en réalité et la charge mesurée lors de l'électrodéposition ne reflète pas nécessairement l'épaisseur réelle des couches. Les causes de ce transfert imparfait d'ions de la solution vers la membrane peuvent notamment s'expliquer par la formation d'hydrogène dans les pores et la dissolution d'une couche métallique par anodisation (Carignan, 2006; Ciureanu et al., 2005). Le rendement de déposition  $\eta$  tient compte de ce transfert imparfait. Toutefois ce rendement peut varier selon les conditions expérimentales de l'électrodéposition (composition de la solution, pH, température).

Une fois les charges de dépôt calculées, le dépôt alterné s'effectue en variant le potentiel par rapport à l'électrode de référence favorisant la réduction d'un électrolyte à la fois. Par exemple pour le dépôt de CoFeB/Cu, nous alternons le potentiel entre -1 V, le potentiel de réduction du CoFeB, et -0,56 V, le potentiel de réduction du Cu, par rapport à l'électrode de référence. Il est possible, grâce à un logiciel de contrôle et d'acquisition de données, de planifier le dépôt automatique des nanofils. L'épaisseur des couches est contrôlée par la charge déposée, en intégrant le courant sur le temps de dépôt. Lorsque la charge atteint la valeur désirée (celle donnée par l'Eq. (2.1)) pour une couche, le potentiel alterne à la valeur requise pour déposer l'autre couche. Le cycle est ainsi répété jusqu'à l'obtention du nombre requis de couches. Ce procédé automatique permet d'obtenir des nanofils de configurations variées. Dans notre cas, nous avons exploré deux familles de configuration, que l'on référera par bicouche et tricouche (voir Figure 2.5). Les nanofils bicouches sont constitués d'alternance de couches magnétiques d'épaisseur  $h_m$  et de couches non-magnétiques (cuivre) d'épaisseur  $h_{nm}$ . Les nanofils tricouches sont constitués d'une couche magnétique d'épaisseur  $h_{m1}$ , d'une couche non-magnétique (cuivre) d'épaisseur  $h_{nm1}$ , d'une seconde couche magnétique d'épaisseur  $h_{m1}$  et d'un espaceur non-magnétique d'épaisseur  $h_{nm2}$ , le tout répété plusieurs fois. L'annexe C présente les dimensions nominales des nanofils étudiés dans ces travaux ainsi que les conditions expérimentales pour les obtenir.

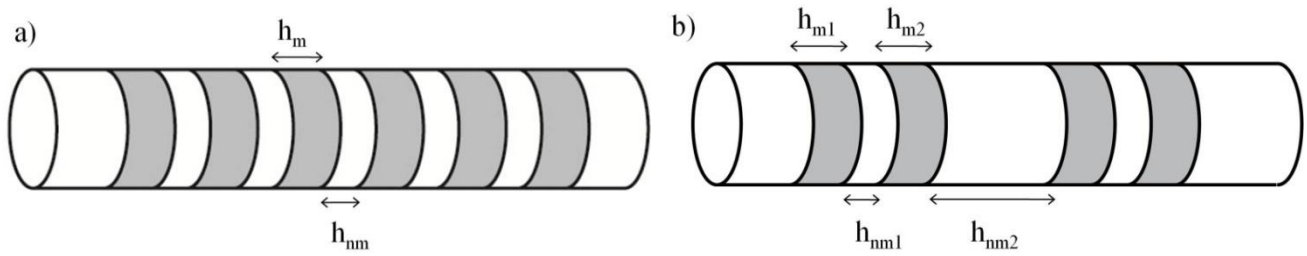


Figure 2.5: Les deux classes de nanofils multicouches que nous avons étudiées. a) Configuration classique avec alternance régulière de bicouches magnétiques/non-magnétiques (par exemple Ni/Cu, CoFeB/Cu). b) Alternance de tricouches de type magnétique/non-magnétique/magnétique, séparées par une épaisse couche non-magnétique. L'épaisseur  $h_{nm2}$  est en général plusieurs fois plus grande que l'épaisseur de la tricouche.

## 2.3 Caractérisation structurelle

Nous présentons ici les résultats de caractérisation structurelle des nanofils. La caractérisation par microscopie électronique à balayage (MEB) sera présentée à la section 2.3.1, et la caractérisation par microscopie électronique en transmission (MET) sera présentée à la section 2.3.2. Nous discuterons d'abord des appareils de mesure, et ensuite nous présenterons les résultats des nanofils multicouches.

### 2.3.1 Microscopie électronique à balayage

La microscopie électronique à balayage (MEB) ou *scanning electron microscopy* (SEM) en anglais, est une technique permettant la cartographie de surfaces à une résolution de l'ordre de quelques nanomètres. Le principe de base est le suivant: un faisceau d'électrons primaires est envoyé sur la surface à analyser, puis l'interaction du faisceau avec la matière résulte, entre autres, en l'émission d'électrons secondaires, la rétrodiffusion des électrons primaires, et l'émission de photons. Chaque type de particule (électrons secondaires, rétrodiffusés ou photons) nécessite un détecteur spécialisé et permet d'obtenir des informations différentes sur l'échantillon. Les électrons secondaires sont d'intérêt pour l'observation de la topographie de surface. Les électrons secondaires proviennent de la bande de conduction et sont émis suite à l'interaction

avec le faisceau d'électrons primaires de haute énergie. La faible énergie ( $<50$  eV) des électrons secondaires fait en sorte qu'ils sont émis à moins de quelques nanomètres de la surface de l'échantillon, les autres électrons étant réabsorbés par le matériau. La détection des électrons secondaires offre donc une sensibilité à la topographie de la surface de l'échantillon.

L'appareil que nous avons utilisé est un MEB-Hitachi, modèle S-4700. Nous utilisons cette méthode de microscopie pour observer deux types d'échantillon dans le cadre de ces travaux:

- Membranes d'alumine (voir [Figure 2.2](#))
- Nanofils libérés de la membrane et déposés sur une surface (voir [Figure 2.6](#))

Ce type de microscopie est utile pour évaluer le diamètre des nanofils et leur rugosité de surface. On observe que le diamètre des nanofils tourne effectivement autour de 40 nm. Ce diamètre relativement constant sur l'ensemble de nos échantillons démontre la stabilité de notre procédure expérimentale de fabrication de l'alumine poreuse. D'un autre côté, les nanofils semblent être caractérisés par une surface irrégulière. Cette rugosité semble provenir de la rugosité interne des pores, comme on peut le constater à la [Figure 2.7](#). Cette rugosité peut avoir plusieurs effets sur les propriétés magnétiques des nanofils, notamment sur la résonance ferromagnétique.



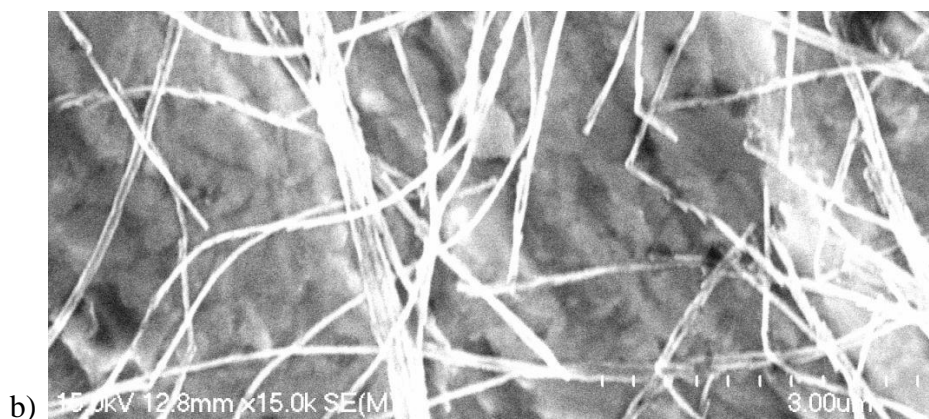


Figure 2.6: Caractérisation par MEB des nanofils libérés de la membrane. Les mesures par MEB n'ont pas permis de distinguer les différentes couches magnétiques et non-magnétiques, ce qui rend son utilité très limitée. a)  $\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(10)/\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(50) \times 1000$  b)  $\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(5)/\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(55) \times 2000$ . Diamètre = 45 nm.

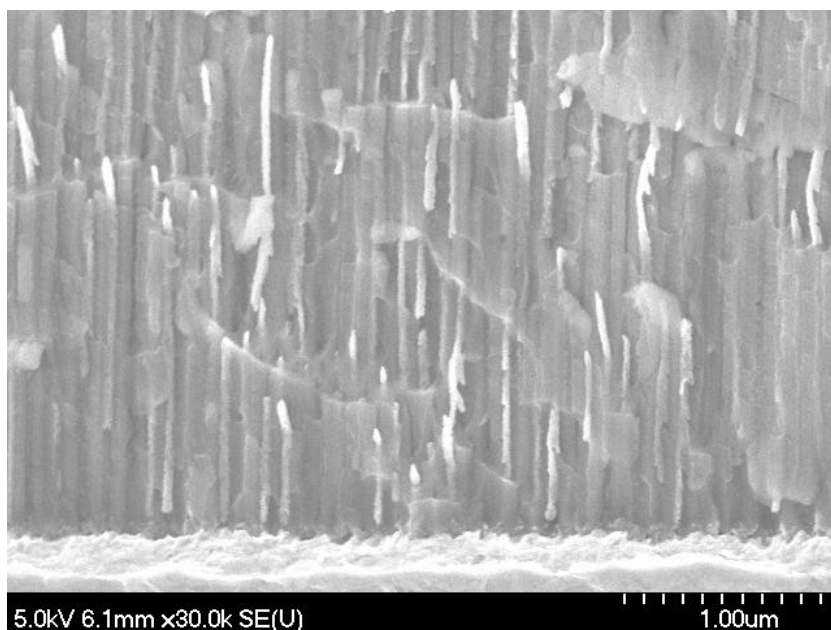


Figure 2.7: Mesure MEB en coupe transverse d'une couche d'alumine contenant des nanofils.

Le MEB ne permet pas, dans notre cas, de mesurer la longueur totale des nanofils puisque ceux-ci se cassent pendant la procédure de dissolution de la membrane. Néanmoins, on peut obtenir une estimation raisonnable de la longueur totale des nanofils multicouches en multipliant

l'épaisseur moyenne des couches magnétiques et non-magnétiques par le nombre de cycles effectués par le potentiostat durant l'électrodéposition.

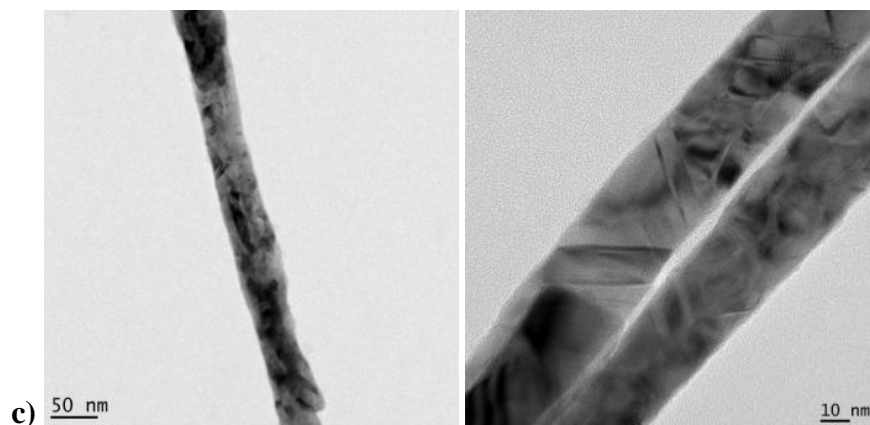
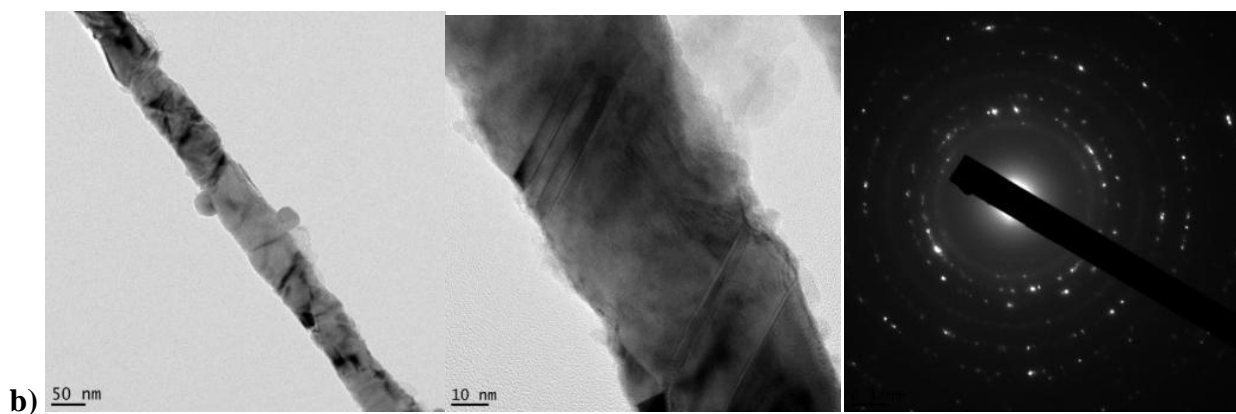
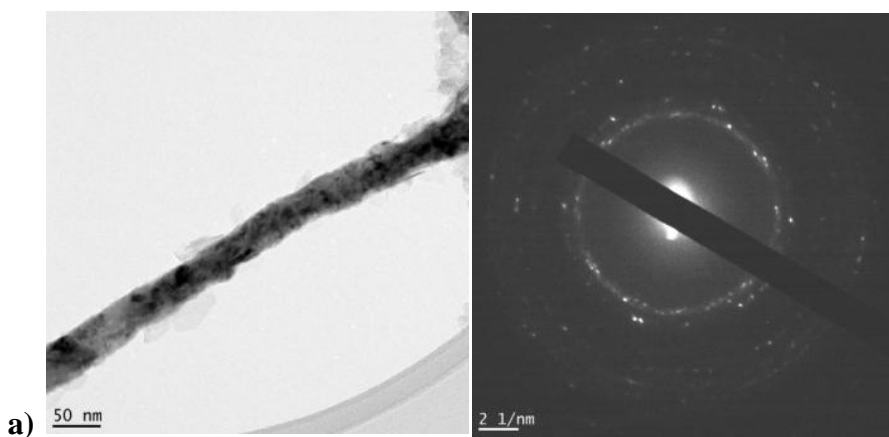
La question-clé reste ici de déterminer l'épaisseur des couches magnétiques et non-magnétiques pour les nanofils multicouches. Nos nombreuses mesures MEB ne nous ont pas permis de distinguer l'alternance des couches magnétiques et non-magnétiques. La principale raison est que le comportement des électrons secondaires dépend du numéro atomique des constituants des nanofils, qui sont ici plutôt semblables (Fe-26, Co-27, Ni-28, Cu-29). Le microscope électronique en transmission nous permet néanmoins de distinguer l'épaisseur des couches, tel que nous verrons à la prochaine section.

### 2.3.2 Microscopie électronique en transmission

La microscopie électronique en transmission (MET) ou *transmission electron microscope* (TEM) en anglais, consiste tout d'abord à soumettre un échantillon à un faisceau d'électrons primaires de haute énergie. L'interaction des électrons avec la matière génère plusieurs types de rayonnements. Les trois types de rayonnement d'intérêt ici sont les électrons diffractés, les électrons transmis, et les rayons X. Selon le type de détecteur et le mode d'imagerie, il est notamment possible d'obtenir le diamètre des nanofils, la cristallinité des nanofils, la composition chimique des couches et l'épaisseur des couches.

Le mode imagerie permet d'analyser le faisceau transmis qui, selon l'épaisseur, la densité et la composition chimique de l'échantillon, conduit à un contraste spatial sur le plan image du microscope. Le mode diffraction permet d'analyser les faisceaux diffractés en plaçant le détecteur dans le plan focal du microscope. Les directions de diffraction des électrons permettent donc de déterminer la nature cristalline de l'échantillon. Le troisième mode que nous avons utilisé est la spectrométrie en énergie des rayons X (EDS) pour l'analyse de la composition chimique des échantillons. Ce mode permet d'obtenir une distribution spatiale de la composition chimique des nanofils. L'appareil que nous avons utilisé est un Jeol JEM-2100F. La Figure 2.8 présente

quelques exemples d'images MET et clichés de diffraction obtenus sur des nanofils multicouches libérés de leur membrane d'alumine. Les clichés de diffraction sont obtenus en focalisant le faisceau sur un rayon couvrant pouvant contenir plusieurs périodes de couches au sein d'un même nanofil. Nous n'avons pas de cliché ne couvrant l'épaisseur que d'une seule couche; ces mesures devraient être prises dans une suite à ce projet.



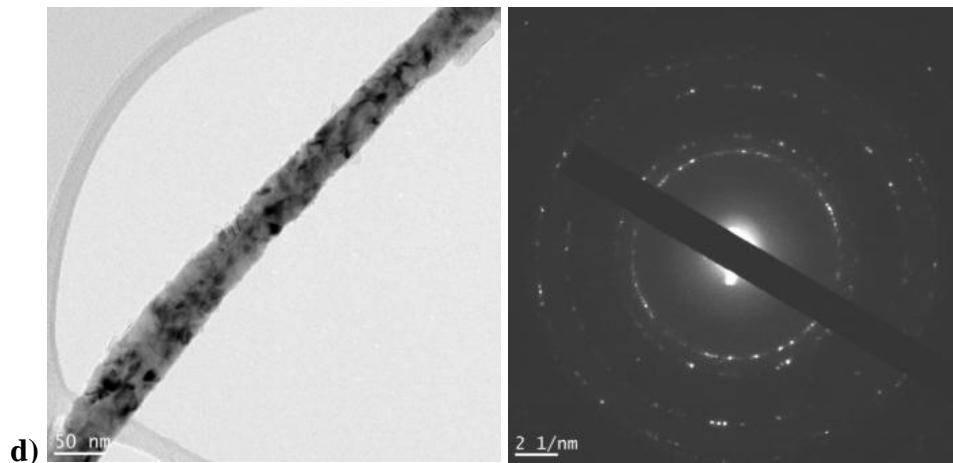


Figure 2.8: Mesures MET des nanofils multicouches libérés de leur membrane avec les épaisseurs ciblées suivantes: a)  $\text{CoFeB}(50)/\text{Cu}(50) \times 154$   
 b)  $\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(10)/\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(50) \times 1000$   
 c)  $\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(5)/\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(55) \times 2000$   
 d)  $\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(10)/\text{CoFeB}(10)/\text{Cu}(75) \times 100$ . Le diamètre des nanofils est d'environ de 45 nm.

Comme on peut le constater, les images MET ne montrent pas l'alternance attendue des couches ferromagnétique et non-magnétiques. Certains clichés (par exemple [Figure 2.8 b](#)) montrent des contrastes pouvant s'apparenter à des couches, mais ces contrastes ne sont pas réguliers et peuvent aussi être dus à des contrastes de diffraction. Ces résultats sont quelque peu étonnants puisque plusieurs autres groupes ont été en mesure de distinguer les couches magnétiques et non-magnétiques par des mesures MET sur des nanofils multicouches, par exemple (Pullini et al., 2007) et (Peng et al., 2007). Néanmoins, à notre connaissance aucun groupe n'a présenté de mesures MET sur des nanofils similaires aux nôtres (en composition et en dimensions). Il est donc très délicat de comparer nos mesures à celles de d'autres groupes.

Une autre information importante extraite de ces images MET concerne l'hypothèse selon laquelle les couches de CoFeB sont amorphes (Ciureanu et al., 2005). En analysant les clichés de diffraction de nos échantillons, on observe que les couches ont effectivement un caractère plutôt polycristallin ([Figure 2.8 a, b, d](#)). Notons que ces clichés de diffraction ont été mesurés sur une petite portion d'un seul nanofil à chaque fois. Cette confirmation est importante puisque notre modèle d'interaction magnétique entre les nanofils fait l'hypothèse que les couches

ferromagnétiques sont amorphes (voir chapitre 3). Nous pourrions en principe déterminer la composition des réseaux cristallins des couches en focalisant sur des portions de nanofils plus petites et obtenir des anneaux de diffraction provenant que d'une seule couche. Nous pourrions ensuite effectuer une analyse des rayons de diffraction afin de les associer à des systèmes cristallins connus du Cu ou du CoFeB. Nous n'avons pas été en mesure d'effectuer cette analyse par manque de temps.

Les mesures EDS ont permis de distinguer l'épaisseur des couches magnétiques et non-magnétiques. La composition chimique a été obtenue en fonction de la position axiale le long des nanofils. La Figure 2.9 présente les résultats de ces mesures pour deux échantillons de nanofils multicouches (de type bicouche). Il est possible de distinguer l'alternance régulière de couches magnétiques (CoFeB) et non-magnétiques (Cu). Les couches de CoFeB sont ici représentées par les pics de Co et Fe. Les atomes de B ne sont pas visibles ici puisqu'ils ne représentent que 1% massique de l'alliage de CoFeB. On remarque que l'intensité du cuivre ne redescend pas jusqu'à zéro dans les couches magnétiques. Ce signal résiduel provient des atomes de cuivre électrodéposés dans la couche magnétique, et de la grille de support en cuivre. L'importance relative de ces deux causes n'est pas établie, d'où la nécessité d'effectuer les mesures MET sur un autre type de grille (Ni par exemple). Cette mesure permettrait d'estimer l'importance des impuretés de cuivre dans les couches magnétiques lors de l'électrodéposition.

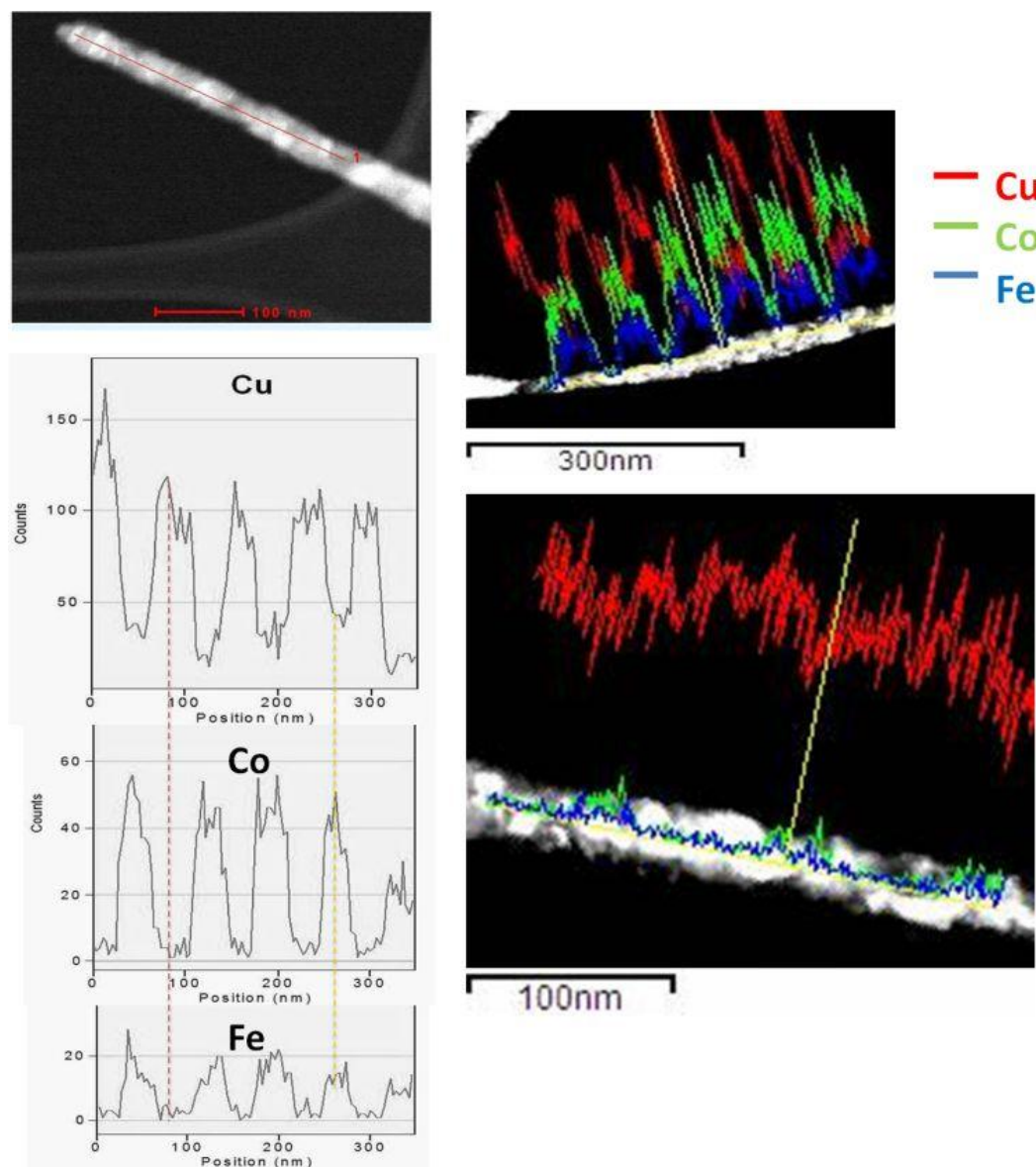


Figure 2.9: Spectres EDS sur des échantillons de nanofils en configurations bicouches et tricouches: CoFeB(50)/Cu(10)×500 (gauche), CoFeB(50)/Cu(50)×154 (sup. droit) CoFeB(10)/Cu(10)/CoFeB(10)/Cu(75) × 100 (inf. droit). Les mesures EDS à gauche sont la gracieuseté de Prof. Karen Kavanagh, Université Simon Fraser. Diamètre = 45 nm.

Ce type de mesure permettrait en principe d'estimer l'efficacité de dépôt des matériaux dans les pores de l'alumine, et d'obtenir une mesure de l'épaisseur réelle de couches. Pour cela il faudrait effectuer une mesure statistique sur plusieurs nanofils et plusieurs types d'échantillons aux dimensions variées. Dans notre cas, ces mesures EDS ne nous permettent pas d'établir avec confiance une efficacité de dépôt qui pourra être généralisée à tous les autres échantillons. Nous observons néanmoins que les pics correspondant aux couches de CoFeB indiquent des épaisseurs autour de 40-50 nm ([Figure 2.9](#) gauche), ce qui est en accord avec l'épaisseur nominale de 50 nm pour ces échantillons (calculée avec l'Éq. (2.1)).

## 2.4 Discussion

Notre objectif initial était de maîtriser la fabrication des réseaux de nanofils multicouches et pour l'instant nous sommes loin de contrôler parfaitement le procédé. D'une part, les nombreux essais d'électrodéposition que nous avons effectués ne nous ont pas permis d'obtenir des nanofils multicouches de qualité régulière; c'est-à-dire que pour des conditions expérimentales similaires les résultats obtenus variaient significativement. D'une autre part, notre capacité à caractériser la structure, notamment l'épaisseur des couches, est encore limitée et demanderait beaucoup de raffinement. Nous proposons ici plusieurs pistes de solutions pour améliorer le procédé.

La première concerne l'utilisation du vernis à ongle comme pour empêcher l'infiltration de solution dans certaines zones de la membrane. Il n'est pas clair si les constituants du vernis ont un effet notable ou pas sur l'électrodéposition. Il est possible que des impuretés provenant du vernis viennent s'insérer dans les pores ou obstruer ceux-ci. De plus, si ces impuretés sont de nature magnétique, cela peut fausser l'analyse des propriétés magnétiques des nanofils. Nous avons éliminé ce questionnement en modifiant la préparation de la membrane pour l'électrodéposition. En effet, nous avons remplacé le vernis par une fine membrane adhésive et photosensible. Cette membrane rend la procédure beaucoup plus propre et permet de contrôler, par photolithographie, les zones où un dépôt est souhaité. Cela améliore la précision de la surface de dépôt, paramètre qui permet d'estimer la charge de dépôt dans l'Éq. (2.1).

La deuxième piste de solution consiste à optimiser les potentiels de dépôt pour les ions magnétiques et non-magnétiques. En effet, les couches magnétiques se dissolvent pendant un bref instant lorsque le potentiel cathodique passe du plus négatif (-1 V pour le CoFeB) au moins négatif (-0,56 V pour le Cu). Cette redissolution des couches magnétiques contribue non seulement à réduire l'efficacité de dépôt ( $h_m$  réelle /  $h_m$  souhaitée), mais accentue la rugosité de surface des nanofils. Une approche potentielle est de limiter cet effet consiste à interrompre le potentiostat (à l'aide du programme d'acquisition) le temps que le potentiel monte à la valeur du Cu, puis de redémarrer le contrôle potentiostatique (Fert & Piraux, 1999). Nous n'avons malheureusement pas eu le temps d'explorer cette technique dans le cadre de ces travaux.

Une troisième piste concerne le pH de la solution électrolytique. Il a été démontré pour des nanofils de Co que le pH de la solution électrolytique influençait significativement la structure cristalline des nanofils (Darques et al., 2004). Cette variation de la structure se traduit par une contribution différente de l'anisotropie magnéto-cristalline à l'anisotropie magnétique totale du réseau de nanofils. Elle peut même contribuer à renverser les directions faciles d'anisotropie, comme nous le montrons en annexe A. C'est pourquoi il est important de contrôler rigoureusement le pH de la solution électrolytique à la valeur de 3,5 qui a été établi lors du développement de l'alliage de CoFeB (Ciureanu et al., 2005).

### **Caractérisation structurelle**

Nous avons vu que la caractérisation structurelle par MEB et MET n'ont pas permis de répondre à toutes les questions concernant l'épaisseur et la nature des couches ferromagnétiques et non-magnétiques. Néanmoins, nous avons obtenu des résultats assez fiables pour poursuivre la caractérisation magnétique avec un bon degré de confiance sur la structure des nanofils.

Une piste de solution concerne la grille servant de support aux nanofils durant la mesure MET. En effet, la grille que nous avons utilisée est composée de cuivre alors que nos nanofils sont également composés de cuivre (Cu) et d'éléments très proches en nombre atomique. Cela masque en quelque sorte le contraste entre les couches de CoFeB et le Cu des différentes

couches. Une manière simple de palier à ce problème serait d'utiliser une grille en nickel (Ni) recouverte de carbone. Cela permettrait probablement d'obtenir un meilleur contraste entre les couches puisqu'on éliminerait le signal de fond causé par la grille de cuivre.

Une autre piste de solution serait de graver sélectivement les couches pour obtenir un contraste topographique des couches, comme l'ont effectué (Pullini et al., 2007). Nous pourrions par exemple utiliser un agent chimique qui graverait plus rapidement l'une des deux couches et observer les nanofils au MET.

Au niveau des clichés de diffractions, ils pourraient donner de l'information pertinente sur la structure cristalline des couches si l'on focalisait sur des couches individuelles. De plus, il faudrait effectuer une analyse des rayons de diffraction afin de les associer à des systèmes cristallins connus du Cu ou du CoFeB.

Malgré ces difficultés, nous avons synthétisé plusieurs nanofils multicouches de qualité suffisante pour poursuivre avec les autres objectifs de l'étude, c'est-à-dire que nous avons observé une structure bien définie en bicouche et tricouche et que les épaisseurs mesurées des couches étaient relativement proches (à moins de 20% près) des épaisseurs nominales. Les objectifs pour la suite sont de modéliser l'anisotropie de réseaux de nanofils tricouches, de mesurer les propriétés magnétiques statiques et dynamiques et les confronter aux prédictions du modèle, et enfin démontrer la faisabilité expérimentale de réseaux de nanofils magnétiquement isotropes.

## CHAPITRE 3 MODÉLISATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

Comme nous l'avons mentionné en introduction, un des intérêts principaux d'un réseau de nanofils multicouches est de pouvoir exercer un contrôle sur ses propriétés magnétiques en ajustant ses paramètres géométriques (diamètre des nanofils, épaisseurs des couches, distance inter-fil) et structurels (composition des couches, structure cristalline, rugosité des pores). L'une de ses propriétés est l'anisotropie effective du réseau, c'est-à-dire que la réponse magnétique du réseau de nanofils se comporte différemment selon la direction du champ magnétique qui lui est appliqué. Nous élaborerons ce concept appliqué aux nanofils multicouches à la section suivante.

Ce chapitre est consacré à la modélisation de l'anisotropie magnétique effective d'un réseau de nanofils tricouches à partir d'un modèle d'interactions dipolaires entre les nanofils. Nous quantifierons cette anisotropie par un champ effectif  $H_{\text{eff}}$  qui caractérisera l'intensité et la direction de l'anisotropie selon un modèle uniaxial. Ce modèle sera ensuite confronté à l'expérience au chapitre 4. L'intérêt de cette modélisation est triple: d'une part cela permettra de généraliser le modèle d'interaction développé par Carignan (2006) sur des systèmes tricouches, d'une autre part cela permettra d'élaborer des règles de design pour guider l'ingénierie de l'anisotropie en fonction des paramètres géométriques du réseau, puis enfin cela permettra d'interpréter les résultats expérimentaux présentés au chapitre 4. Nous avons également utilisé ce modèle d'anisotropie effective pour développer un modèle de résonance ferromagnétique appliqué aux nanofils tricouches.

### 3.1 Anisotropie magnétique effective

L'anisotropie magnétique peut se définir comme la dépendance de l'énergie magnétique d'un matériau par rapport à l'orientation de son aimantation relativement à un référentiel fixe lié à l'échantillon. Cette propriété est à l'origine de l'hystérésis et de la coercivité des matériaux ferromagnétiques (Skomski, 2008). L'anisotropie magnétique a en général plusieurs origines dont

l'importance dépend essentiellement de la composition chimique, de la structure cristalline, et de la forme des matériaux en question.

Dans cette section nous décrirons tout d'abord les différentes sources contribuant de façon non-négligeable à l'anisotropie globale d'un réseau de nanofils ferromagnétiques multicouches. Nous expliquerons ensuite le modèle élaboré par Carignan (2006) et que nous utilisons ici dans le cas de nanofils multicouches. Nous discuterons enfin des prédictions réalisées à l'aide de ce modèle.

### 3.1.1 Contributions à l'anisotropie effective

Les réseaux de nanofils multicouches offrent plusieurs degrés de liberté quant aux possibilités d'ingénierie de leur anisotropie magnétique effective. Afin de mieux comprendre l'origine de cette dernière, nous allons séparer les contributions physiques à l'anisotropie en deux grands mécanismes, l'interaction dipolaire magnétique et l'interaction magnétocristalline, eux même subdivisés en plusieurs contributions qui sont susceptibles d'avoir une importance plus ou moins grande sur l'anisotropie globale du réseau.

L'interaction dipolaire magnétique en est une de longue portée. Bien que le champ magnétique produit par un dipôle magnétique à une distance  $r$  varie en  $1/r^3$ , tel que montré à l'Éq. (3.2), le nombre de dipôles pouvant interagir avec un autre à distance  $r$  est proportionnel à  $r^3$ , ce qui donne lieu à une interaction net significative entre des régions aimantées non adjacentes. Pour des échantillons homogènes et uniformément aimantés, cette interaction dépend essentiellement des monopoles effectifs (dipôles non compensés) à la surface du matériau et s'exprime comme un facteur de désaimantation (anisotropie de forme). Dans le cas de nos échantillons, l'interaction dipolaire au sein d'une monocouche magnétique sera traitée comme telle. De même, l'interaction avec les autres monocouches d'un même fil donnera lieu à un facteur de désaimantation effectif (anisotropie d'interaction intrafil) et l'interaction avec les monocouches de tous les autres fils sera prise en compte par un facteur de désaimantation interfils (anisotropie d'interaction interfils).

L'interaction d'origine magnétocristalline est à courte portée. Elle dépend essentiellement de l'environnement atomique des ions magnétiques (distance, orientation et nature des proches voisins). Dans un cristal, elle reflète la symétrie du réseau cristallin (anisotropie magnétocristalline) et elle peut être sensible aux déformations pouvant donner lieu à des effets de magnétostrictifs (anisotropie magnétoélastique). Dans les cristaux amorphes, les effets magnétoélastiques dominent l'anisotropie atomique. Dans les polycristaux, les effets dépendent de la taille relative des grains par rapport aux longueurs caractéristiques d'interaction. Pour les matériaux à faible anisotropie magnétocristalline, l'interaction magnétocristalline aura tendance à s'annuler en moyenne.

En général, l'anisotropie de nos structures est dominée par les effets dipolaires (Carignan 2006), avec possiblement une contribution magnétocristalline dans le cas des fils de Co. D'autres sources d'anisotropie, telles que l'anisotropie de surface ou l'interaction d'échange entre les couches ferromagnétiques, ne seront pas traitées ici. Dans le cas de l'interaction d'échange entre les trisouches, nous avons choisi des couches d'espacement suffisamment épaisses pour qu'elle soit négligeable. L'anisotropie de surface, tout comme l'anisotropie d'origine magnétoélastique, si elles se manifestent, seront pris en compte indirectement dans un terme d'anisotropie magnétocristalline effective.

### **Anisotropie de forme**

On sait qu'il est en général plus facile d'aimanter un objet de forme ellipsoïdale sur son grand axe que sur son petit axe: ce comportement est dû à l'anisotropie de forme du matériau. Celle-ci a pour origine les interactions dipolaires entre les moments magnétiques atomiques. Ces interactions font en sorte que le champ magnétique à l'intérieur du matériau tend à le désaimanter et ce champ est connu sous le nom de champ de désaimantation ( $\mathbf{H}_d$ ). Il existe un lien de proportionnalité entre le champ de désaimantation et l'aimantation du matériau:

$$\mathbf{H}_d = - \bar{N}_d \mathbf{M} \quad (3.1)$$

où  $\bar{N}_d$  est le tenseur de désaimantation dépendant de la forme du matériau. Des expressions exactes de  $\bar{N}_d$  existent pour les ellipsoïdes aimantés uniformément (Osborne, 1945), dont se sert Carignan (2006) pour approximer les couches ferromagnétiques dans son modèle d'interaction. Dans le cas de structures cylindriques, il est possible d'obtenir une expression analytique du tenseur de désaimantation effectif que nous appliquerons plus loin pour notre système (Tandon, 2004).

### Interactions dipolaires entre couches

Une part importante de l'anisotropie du réseau de nanofils multicouches provient des interactions magnétiques dipolaires entre les couches ferromagnétiques, que ce soit au sein d'un même fil ou entre différents fils. Si nous considérons chacune de ces couches uniformément aimantée comme un dipôle ponctuel (macrospin), l'énergie d'interaction entre deux dipôles s'écrit comme

$$E_{\text{dip},i-\text{dip},j} = -\frac{\mu_0}{4\pi} \frac{3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{R}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{R}_{ij}) - (\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j)R_{ij}^2}{R_{ij}^5} \quad (3.2)$$

où  $\mathbf{m}_i$  et  $\mathbf{m}_j$  sont les vecteurs moments dipolaire magnétique ( $\text{A.m}^2$ ) de chaque couche et  $\mathbf{R}_{ij}$  est le vecteur spatial reliant les deux positions atomiques des moments.

Cette contribution dipolaire est particulièrement importante dans le cas des tricouches puisque les couches magnétiques sont rapprochées. De façon générale, le comportement magnétique individuel d'une couche est influencée par le moment magnétique de toutes les autres couches ferromagnétiques du réseau, tel que discuté au début de cette section.

### Anisotropie magnétocristalline

L'anisotropie magnéto-cristalline provient de deux mécanismes fondamentaux: le couplage spin-orbite et les interactions des ions magnétiques avec le champ cristallin (Skomski, 2008). Selon la symétrie du système cristallin du matériau, l'arrangement des atomes fait en sorte que les orbitales atomiques des ions magnétiques s'orienteront préférentiellement par rapport aux axes cristallographiques, ce qui influencera l'orientation des moments cinétiques de spin

responsables du magnétisme. Certaines directions cristallographiques seront donc plus faciles à aimanter et certaines directions plus difficiles.

D'un point de vue pratique, on peut modéliser cette contribution par une énergie libre qui dépend des variables angulaires. Par exemple, l'anisotropie magnétocristalline uniaxiale de certains matériaux magnétiques peut être modélisée par une relation simple du type:

$$E_{cr} = K_0 + K_1 \sin^2 \theta \quad (3.3)$$

où  $\theta$  est l'angle que fait l'aimantation avec l'axe cristallin principal (axe facile), et  $K_0, K_1$  sont des constantes d'anisotropie s'exprimant en ( $J/m^3$ ). On parle ici d'une anisotropie uniaxiale puisqu'un seul angle définit la dépendance de l'anisotropie. Des relations beaucoup plus compliquées et faisant intervenir 2 ou 3 axes orthogonaux peuvent s'appliquer à d'autres matériaux. Ce qui est important de retenir ici est que cette contribution peut prendre de l'importance si nos couches ferromagnétiques ont une structure cristalline ordonnée. Néanmoins, la caractérisation structurale des couches de CoFeB nous a montré que les couches sont tout au plus polycristallines, ce qui favorise une hypothèse d'anisotropie magnétocristalline nulle en moyenne sur le volume d'une couche. On gardera en tête, cependant, qu'une anisotropie cristalline apparente pourrait se manifester si l'anisotropie de surface s'avère importante.

### 3.1.2 Tenseur d'anisotropie effective

Nous décrivons maintenant le modèle que nous avons utilisé pour décrire l'anisotropie effective du réseau de nanofils multicouche. Ce modèle a été élaboré par Carignan (2006) et nous en avons modifié certains aspects dans le cadre de ces travaux. Le système étudié consiste en un réseau de nanofils multicouches tel que présenté à la [Figure 3.1](#). Dans ce modèle on suppose que chaque tricouche est composée de deux couches ferromagnétiques d'épaisseurs  $h_{m1}$  et  $h_{m2}$ , séparées entre elles d'une couche non-magnétique d'épaisseur  $h_{nm1}$ . Les tricouches sont séparées entre elles par une autre couche non-magnétique d'épaisseur  $h_{nm2}$ . Les nanofils sont supposés

uniformes, de diamètre  $d = 2a$  et de longueur  $L$  constants. Le nombre de tricouches est lui aussi constant et permet de définir la longueur d'un nanofil comme:

$$L = N \times (h_{m1} + h_{m2} + h_{nm1} + h_{nm2}) \quad (3.4)$$

avec  $N$  le nombre de tricouches. Les nanofils sont disposés selon un réseau hexagonal de taille infinie dans le plan et la distance inter-fil est supposée constante.

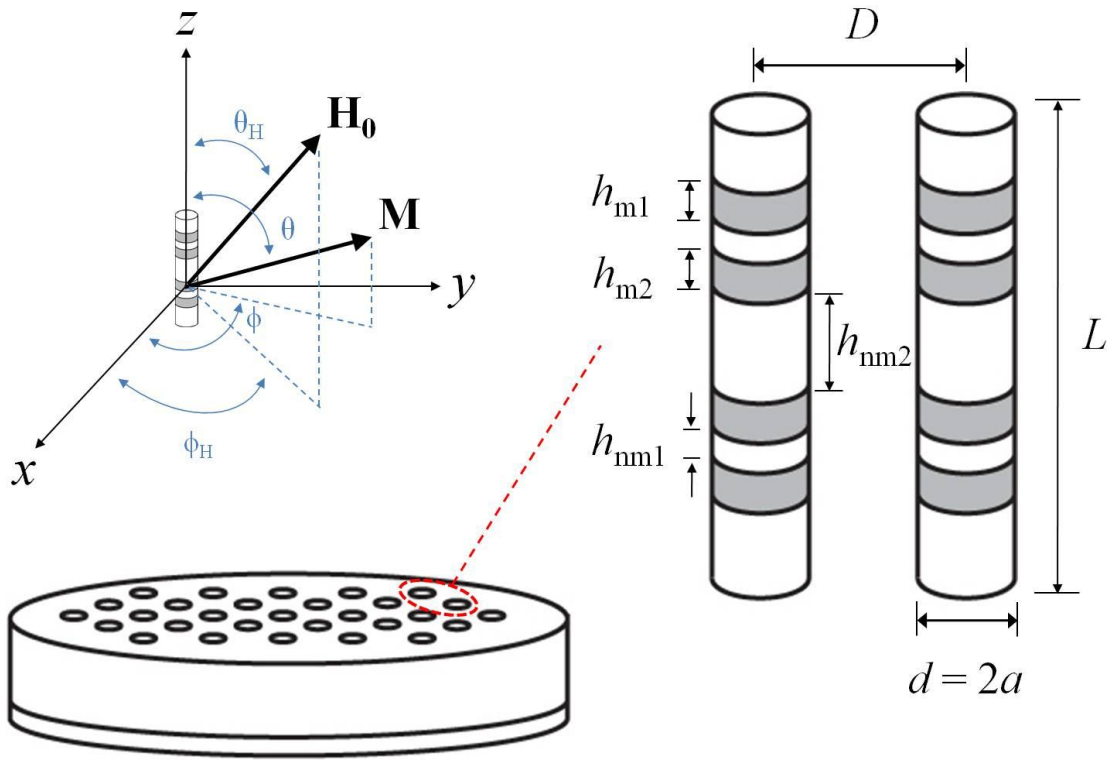


Figure 3.1 : Système de coordonnées utilisé et dimensions caractéristiques du réseau de nanofils multicouches dans notre modélisation. L'épaisseur de la membrane est de l'ordre de  $200 \mu\text{m}$  alors que les nanofils sont d'une longueur de l'ordre de  $30\text{-}50 \mu\text{m}$  dans notre cas.

Un champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  agit sur le réseau et s'écrit:

$$\mathbf{H}_0 = H_0(\sin \theta_H \cos \varphi_H \hat{\mathbf{x}} + \sin \theta_H \sin \varphi_H \hat{\mathbf{y}} + \cos \theta_H \hat{\mathbf{z}}). \quad (3.5)$$

On admet pour l'instant que les dipôles sont tous orientés parallèlement les uns aux autres (plus tard nous allons considérer deux sous-réseaux indépendants pouvant interagir). La réponse magnétique du réseau de nanofils s'exprime par une aimantation  $\mathbf{M}$  s'écrivant:

$$\mathbf{M} = M(\sin \theta \cos \varphi \hat{\mathbf{x}} + \sin \theta \sin \varphi \hat{\mathbf{y}} + \cos \theta \hat{\mathbf{z}}) \quad (3.6)$$

où  $M$  est l'amplitude de l'aimantation (moment dipolaire par unité de volume intrinsèque aux couches individuelles). On suppose que chaque couche ferromagnétique a un moment magnétique  $m = \pi a^2 h_{mi} M_s$  (avec  $i = 1, 2$  et  $M_s$  est l'aimantation à saturation) et on considère les moments magnétiques comme des dipôles positionnés au centre de chaque couche. Notre approche consistera à établir une relation entre le champ magnétique (ou densité de flux magnétique)  $\mathbf{B}$  et l'aimantation  $\mathbf{M}$  du type:

$$\mathbf{B} = -\mu_0 \bar{\mathbf{N}} \mathbf{M} \quad (3.7)$$

où  $\bar{\mathbf{N}}$  est un tenseur de désaimantation effectif que l'on déterminera. Ce tenseur représente la contribution des différentes sources d'anisotropie magnétique du réseau. Pour la suite, nous ne considérerons que deux contributions à l'anisotropie mentionnées plus haut: les interactions dipolaires et l'anisotropie de forme. Nous laissons de côté l'anisotropie magnétocristalline pour le moment. D'une part, la caractérisation structurale n'a pas permis d'établir la configuration cristallographique des couches de CoFeB. D'autre part, nos travaux antérieurs suggèrent que l'anisotropie est dominée par les effets dipolaires.

### Interactions dipolaires

On peut commencer par calculer le tenseur de désaimantation provenant des interactions dipolaires entre les couches ferromagnétiques. Dans l'hypothèse où les couches se comportent comme des dipôles magnétiques de moments  $\mathbf{m}$ , et que les dipôles sont suffisamment éloignés l'un de l'autre, le champ magnétique  $\mathbf{B}_i$  émanant d'un dipôle  $\mathbf{m}_i$  situé en  $\mathbf{r}_i = x_i \hat{\mathbf{x}} + y_i \hat{\mathbf{y}} + z_i \hat{\mathbf{z}}$  et ressenti par un dipôle situé à l'origine  $\mathbf{r}_0 = (0, 0, 0)$  s'écrit:

$$\mathbf{B}_{\text{dip},i} = \frac{\mu_0}{4\pi r_i^5} \{3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_i)\mathbf{r}_i - r_i^2 \mathbf{m}_i\} \quad (3.8)$$

où  $\mathbf{m}_i$  est le moment magnétique du dipôle  $i$ . On doit factoriser cette expression pour faire apparaître clairement la relation  $\mathbf{B}_i$  et  $\mathbf{m}_i$  comme dans l'Éq. (3.7):

$$(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_i)\mathbf{r}_i = \overline{\mathbf{r}_i \mathbf{r}_i^T} \mathbf{m}_i, \quad \overline{\mathbf{r}_i \mathbf{r}_i^T} = \begin{pmatrix} x_i^2 & y_i x_i & z_i x_i \\ x_i y_i & y_i^2 & z_i y_i \\ x_i z_i & y_i z_i & z_i^2 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

où  $\mathbf{r}_i^T$  est la transposée du vecteur  $\mathbf{r}_i$ . On peut donc écrire l'Éq. (3.8) comme

$$\mathbf{B}_{\text{dip},i} = -\frac{\mu_0}{4\pi r_i^5} \{r_i^2 \mathbb{I} - 3\overline{\mathbf{r}_i \mathbf{r}_i^T}\} \mathbf{m}_i \quad (3.10)$$

avec  $\mathbb{I}$  la matrice identité.

Le modèle de Carignan (2006) ne tient compte que d'une seule épaisseur commune à toutes les couches magnétiques, alors que nous en avons deux dans notre cas. Nous pouvons surmonter cette complication en considérant le système comme la superposition de deux sous-réseaux de couches ferromagnétiques, comme l'illustre la [Figure 3.2](#). Cette astuce nous permettra d'appliquer la démarche de Carignan (2006) à chacun de ces deux sous-réseaux.

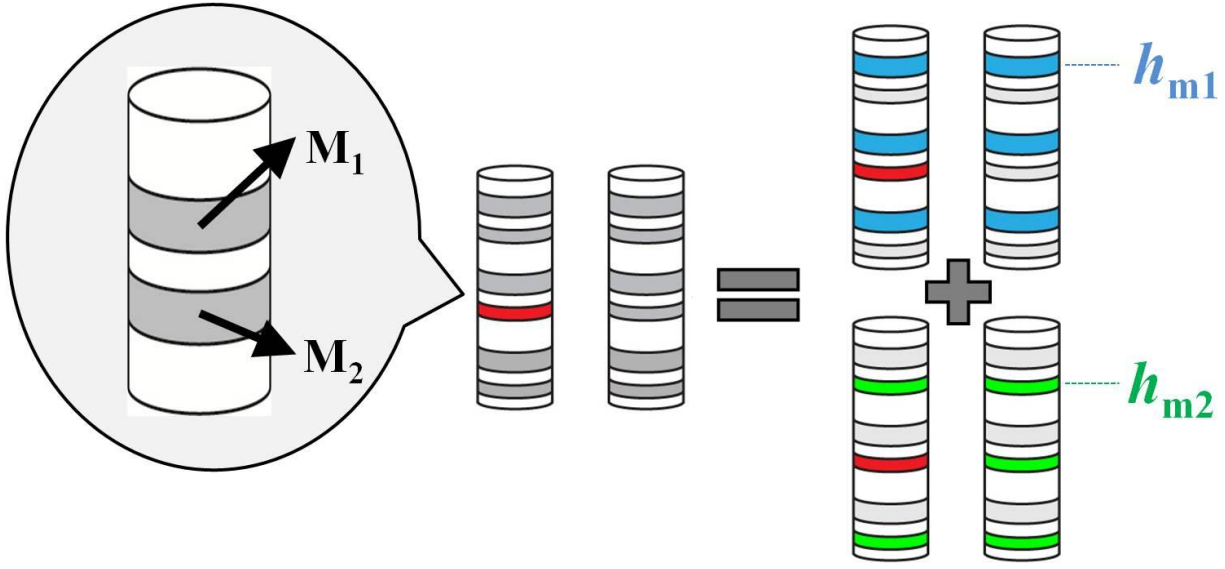


Figure 3.2 : Système de nanofils tricouches comme la superposition de deux systèmes bicouches.

Nous considérons maintenant que le réseau est composé de deux groupes d'aimantation  $\mathbf{M}_1$  et  $\mathbf{M}_2$  d'orientation et d'amplitude différentes, tel que montré à la [Figure 3.2](#). Le premier groupe correspond aux couches supérieures alors que le deuxième aux couches inférieures de chaque tricouche. L'amplitude de  $\mathbf{M}_i$  est égale au moment magnétique  $\mathbf{m}_i$  d'une couche divisé par son volume ( $\pi a^2 h_{m,i}$ ). On obtient le champ dipolaire ressenti par une couche en sommant les contributions dipolaires des autres couches sur elle. On sépare l'interaction avec la couche voisine de l'interaction avec les autres couches pour mieux faire ressortir le couplage entre les deux sous réseaux qui devrait dépendre de la distance  $h_{m1}$ . Nous développerons la suite à partir du champ dipolaire ressenti par une couche supérieure (d'aimantation  $\mathbf{M}_1$  et d'épaisseur  $h_{m,1}$ ), mais le résultat est parfaitement symétrique pour la couche inférieure:

$$\mathbf{B}_{\text{dip},1} = -\mu_0 \bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1} \mathbf{M}_1 - \mu_0 \bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2} \mathbf{M}_2 \quad (3.11)$$

où  $\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1}$  et  $\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2}$  sont les tenseurs de désaimantation effectif dipolaire du réseau englobant les contributions de toutes les couches ferromagnétiques sur la couche de référence. Nous développerons plus loin un tenseur  $\bar{\mathbf{N}}_{12}$  représentant l'interaction dipolaire provenant de la couche jumelle dans la tricouche de référence. Ces deux tenseurs s'écrivent:

$$\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1} = \frac{a^2 h_{m1}}{4} \sum_{r_i} \frac{1}{r_i^5} \begin{pmatrix} r_i^2 - 3x_i^2 & -3y_i x_i & -3z_i x_i \\ -3x_i y_i & r_i^2 - 3y_i^2 & -3z_i y_i \\ -3x_i z_i & -3y_i z_i & r_i^2 - 3z_i^2 \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

$$\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2} = \frac{a^2 h_{m2}}{4} \sum_{r_j} \frac{1}{r_j^5} \begin{pmatrix} r_j^2 - 3x_j^2 & -3y_j x_j & -3z_j x_j \\ -3x_j y_j & r_j^2 - 3y_j^2 & -3z_j y_j \\ -3x_j z_j & -3y_j z_j & r_j^2 - 3z_j^2 \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

Comme on suppose ici que le réseau est hexagonal et infini dans le plan, il existe deux axes de symétries; l'un selon  $x = 0$  et l'autre selon  $y = 0$ . Les termes hors diagonaux étant composés de fonctions impaires, ceux-ci sont nuls en effectuant la somme sur les  $i, j$ . De plus, les deux premiers termes diagonaux de chaque matrice sont égaux par symétrie du réseau. Tout cela permet de simplifier considérablement les Éq. (3.12) et (3.13):

$$\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1} = \begin{pmatrix} N_{xx1} & 0 & 0 \\ 0 & N_{xx1} & 0 \\ 0 & 0 & N_{zz1} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2} = \begin{pmatrix} N_{xx2} & 0 & 0 \\ 0 & N_{xx2} & 0 \\ 0 & 0 & N_{zz2} \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

où les termes  $N_{xx}$  et  $N_{zz}$  s'écrivent:

$$N_{xx} = \sum_{r_i} \frac{a^2 h_m (r_i^2 - 3x_i^2)}{4r_i^5} = \sum_{r_i} \frac{a^2 h_m (r_i^2 - 3y_i^2)}{4r_i^5} \quad (3.15)$$

$$N_{zz} = \sum_{r_i} \frac{a^2 h_m (r_i^2 - 3z_i^2)}{4r_i^5}$$

On remarque que la trace de chaque matrice est nulle, c'est-à-dire que  $2N_{xx} + N_{zz} = 0$ . On n'aura donc qu'un seul de ces deux termes à calculer pour déterminer le tenseur de désaimantation  $\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip}}$ . Nous choisissons ici de développer le terme  $N_{zz}$ , pouvant en fait être décomposé en deux sommes qui ont des significations physiques différentes:

$$N_{zz} = \sum_{r_i} \frac{a^2 h_m (r_i^2 - 3z_i^2)}{4r_i^5} = N_{\text{intra}} + N_{\text{inter}} \quad (3.16)$$

Le terme  $N_{\text{intra}}$  représente les interactions dipolaires avec les couches au sein du même nanofil (sauf la couche jumelle), alors que  $N_{\text{inter}}$  modélise les interactions avec les couches des autres nanofils. Calculons tout d'abord le terme  $N_{\text{intra}}$ , soit lorsque  $\mathbf{r}_i = (0, 0, z_i)$ . Dans ce cas, le terme  $N_{zz}$  s'écrit :

$$N_{\text{intra}} = -\frac{a^2 h_m}{2} \sum_{z_i} \frac{1}{|z_i|^3} \quad (3.17)$$

où  $z_i$  est la position de chaque couche au sein d'un même nanofil (par rapport au point  $z_0 = 0$  de la couche de référence). On peut montrer (Carignan et al., 2007) que ce terme peut être calculé par l'expression suivante :

$$N_{\text{intra},1} = \sum_n \frac{\alpha_+(2nh - h_{m1}) - \alpha_-(2nh + h_{m1})}{2\alpha_+\alpha_-}$$

avec  $\alpha_{\pm} = \sqrt{(2nh)^2 + h_m^2 \pm 4nhh_m + (2a)^2}$

$$N_{\text{intra},2} = \sum_n \frac{\alpha_+(2nh + 2d_{\text{tr}} - h_{m2}) - \alpha_-(2nh + 2d_{\text{tr}} + h_{m2})}{2\alpha_+\alpha_-}$$

avec  $\alpha_{\pm} = \sqrt{(2nh + 2d_{\text{tr}})^2 + h_m^2 \pm 4(nh + d_{\text{tr}})h_m + (2a)^2}$

(3.18)

où  $n$  correspond à la  $n^{\text{ième}}$  couche magnétique du nanofil (hormis la couche jumelle),  $h = h_{m1} + h_{m2} + h_{nm1} + h_{nm2}$  est la distance entre deux couches du même sous-réseau. L'Éq. (3.18) est obtenue en considérant des éléments de volume infinitésimaux  $dV$  puis en intégrant la contribution d'interaction intrafil sur le volume de chaque couche. On pourra consulter (Carignan,

2006) pour plus de détails sur les mathématiques derrière ce modèle. Le terme  $N_{\text{intra}}$  doit donc être calculé pour chacun des deux sous-réseaux de couches ferromagnétiques d'épaisseurs  $h_{m1}$  et  $h_{m2}$ . Nous pouvons utiliser l'Éq. (3.18) pour calculer un terme  $N_{12}$  représentant l'interaction dipolaire entre les deux couches jumelles. Pour ce faire, il suffit de ne calculer que le terme en  $n = 0$ :

$$N_{12} = \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{2a}{h_{m1} + 2h_{nm1}}}} - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{2a}{h_{m1} + 2h_{nm1} + 2h_{m2}}}} \right] \quad (3.19)$$

Néanmoins, il est probable que ce terme ne décrive pas correctement l'interaction des couches jumelles plus celles-ci sont proches l'une de l'autre. Une approche que nous n'avons pas eue le temps d'approfondir ici est de procéder à une double intégration des interactions dipolaires sur tous les dipôles infinitésimaux des deux couches jumelles. Le fait de considérer une des deux couches comme un macrospin est peut-être une hypothèse erronée en-dessous d'une certaine distance entre ces couches jumelles.

Dans le cas où l'on considère les interactions dipolaires provenant des couches de nanofils différents, soit lorsque  $\rho_i^2 = x_i^2 + y_i^2 \neq 0$ , on calcule le terme  $N_{\text{inter}}$ :

$$N_{\text{inter}} = \sum_{\rho_i, z_i} \frac{a^2 h_m (\rho_i^2 - 2z_i^2)}{4(\rho_i^2 + z_i^2)^{5/2}} \quad (3.20)$$

On divise chaque couche en petits disques infinitésimaux d'épaisseurs  $dt$  et on intègre les interactions dipolaires de tous les disques sur chacune des couches de tous les nanofils du réseau. Après évaluation de l'intégrale on obtient :

$$N_{\text{inter},1} = a^2 \sum_{\rho_i} \sum_n \frac{\beta_+(h_{m1} - 2nh) + \beta_-(h_{m1} + 2nh)}{\beta_+ \beta_-} \quad (3.21)$$

$$\text{avec } \beta_{\pm} = \{(2nh)^2 + h_{m1}^2 \pm 4nhh_{m1} + (2\rho_i)^2\}^{3/2}$$

$$N_{\text{inter},2} = a^2 \sum_{\rho_i} \sum_n \frac{\beta_+(h_{m2} - 2nh - 2d_{\text{tr}}) + \beta_-(h_{m2} + 2nh + 2d_{\text{tr}})}{\beta_+ \beta_-}$$

$$\text{avec } \beta_{\pm} = \{(2nh + 2d_{\text{tr}})^2 + h_{m2}^2 \pm 4(nh + d_{\text{tr}})h_{m2} + (2\rho_i)^2\}^{3/2}$$

Les sommations sur  $\rho_i$  sont bornées par l'étendue du réseau (nous verrons ses limitations plus loin) et sur  $n$  par le nombre de tricoches au sein d'un nanofil. Les termes  $N_{\text{intra}}$  et  $N_{\text{inter}}$  sont donc calculées pour les deux sous-réseaux afin d'obtenir les tenseurs de désaimantation dipolaires de l'Éq. (3.14).

### Anisotropie de forme

Maintenant que nous avons calculé la contribution des interactions dipolaires entre les couches ferromagnétiques, déterminons l'effet de la forme des couches. Comme nous l'avons mentionné plus haut, la forme cylindrique des couches peut jouer un rôle important dans l'anisotropie effective du réseau de nanofils. On peut montrer que le tenseur de désaimantation associé à la forme d'une couche cylindrique s'écrit:

$$\bar{\mathbf{N}}_{\text{forme}} = \begin{pmatrix} N_{IP} & 0 & 0 \\ 0 & N_{IP} & 0 \\ 0 & 0 & N_{OOP} \end{pmatrix} \quad (3.22)$$

avec  $N_{IP}$  et  $N_{OOP}$  s'écrivant (Tandon, 2004):

$$N_{IP} = \frac{1}{2} - \frac{1}{2\tau} \left\{ \frac{4}{3\pi} - \frac{4}{3\pi} \sqrt{1 + \tau^2} [\tau^2 K(\kappa) + (1 - \tau^2)E(\kappa)] + \tau \right\} \quad (3.23)$$

$$N_{OOP} = \frac{1}{\tau} \left\{ \frac{4}{3\pi} - \frac{4}{3\pi} \sqrt{1 + \tau^2} [\tau^2 K(\kappa) + (1 - \tau^2)E(\kappa)] + \tau \right\}$$

où  $\tau = h_m/2a$ ,  $\kappa = 1/(1 + \tau^2)$ , et  $K(\kappa)$  et  $E(\kappa)$  sont respectivement les intégrales elliptiques complètes de première et deuxième espèces. On remarque que  $2N_{IP} + N_{OOP} = 1$ , ce qui nous permettra de ne calculer qu'un seul de ces termes pour déterminer  $\bar{\mathbf{N}}_{\text{forme}}$ . Le champ de désaimantation associé à la forme de la couche supérieure s'écrit donc

$$\mathbf{H}_d = -\bar{\mathbf{N}}_{\text{forme},1} \mathbf{M}_1 \quad (3.24)$$

### 3.1.3 Formes analytiques des tenseurs d'anisotropie

Les Éqs. (3.18), (3.21) et (3.23) sont utiles d'un point de vue numérique et s'implémentent facilement dans un code de calcul, mais elles ne se prêtent pas à une interprétation facile de l'influence des facteurs géométriques sur l'anisotropie. De plus, le temps de calcul devient vite imposant avec un grand nombre de nanofils considéré pour  $N_{\text{inter}}$ . On ne peut toutefois pas négliger les fils lointains puisqu'il s'agit d'une interaction longue portée, tel que discuté plus tôt. Ce que l'on peut faire cependant est d'évaluer un certain nombre de fils voisins de façon discrète et de transformer la somme en intégrale continue pour les fils lointains, en considérant un réseau latéral infini. C'est pourquoi nous tentons maintenant de déterminer des expressions analytiques faisant mieux sortir l'aspect physique de ces équations. Pour cela, nous nous inspirons de la démarche développée dans (Carignan, 2007). Définissons tout d'abord quelques paramètres :

$$f_1 = h_{m1}/h \quad , \quad f_2 = h_{m2}/h \quad \text{et} \quad f_3 = h_{nm1}/h \quad (3.25)$$

représentant les facteurs de remplissage des couches ferromagnétiques, pouvant aller de 0 à 1 selon l'épaisseur des couches (rappelons que  $h = h_{m1} + h_{m2} + h_{nm1} + h_{nm2}$ ). Le rapport de forme des couches ferromagnétiques est exprimé par :

$$c_1 = h_{m1}/2a \quad , \quad c_2 = h_{m2}/2a \quad \text{et} \quad c_3 = h_{nm1}/2a \quad (3.26)$$

où  $2a$  est le diamètre des nanofils. Dans notre cas, ce rapport est généralement plus petit que 1 puisque les épaisseurs  $h_m$  de nos échantillons sont de l'ordre de 2-10 nm pour des diamètres d'environ 45 nm. Nous définissons également le facteur de porosité  $P$  tel que  $P/\pi a^2$  représente la densité planaire de nanofils dans le réseau (nombre de nanofils par unité de surface de membrane). Nous définissons enfin un paramètre de longueur normalisée :

$$s = L/2D \quad (3.27)$$

$L$  étant la longueur totale du nanofil ( $L = Nh$ , avec  $N$  le nombre de tricouches) et  $D$  étant la distance inter-fil. En pratique le paramètre  $s$  est de l'ordre de  $N/2$  puisque  $h \sim D$  pour les nanofils tricouches que nous avons étudié. La première simplification que nous pouvons effectuer concerne l'anisotropie de forme. En approximant la couche cylindrique ferromagnétique par une ellipsoïde oblate, le facteur de désaimantation  $N_{OOP}$  peut s'écrire comme :

$$N_{OOP} = \frac{1}{1 - c_1^2} \left( 1 - \frac{c_1}{\sqrt{1 - c_1^2}} \arcsin \sqrt{1 - c_1^2} \right) \quad (3.28)$$

qui, dans le cas où la couche ferromagnétique est petite par rapport au diamètre ( $c_1 \ll 1$ ), peut être bien approximé par :

$$N_{OOP} = 1 - \frac{\pi}{2} c_1$$

(3.29)

La [Figure 3.3](#) montre que l'approximation de  $N_{OOP}$  n'est valide que pour des valeurs suffisamment petites de  $c$ . On voit que l'on peut commencer à utiliser l'Éq. (3.29) avec confiance que pour  $c < 0,2$ .

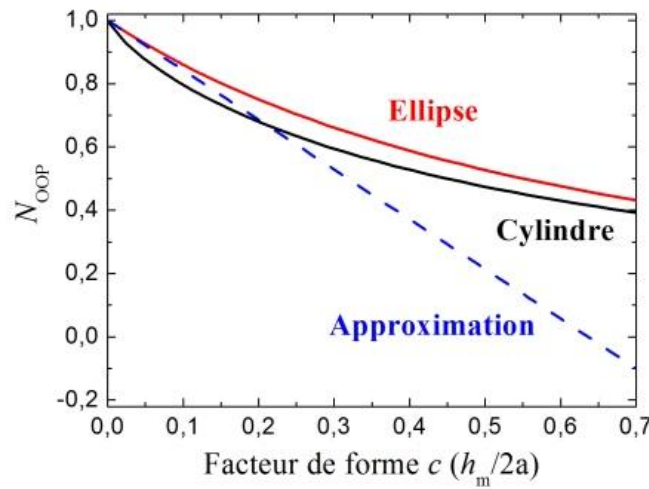


Figure 3.3 : Forme de  $N_{\text{OOP}}$  en fonction du facteur de forme des couches ferromagnétiques  $c$  pour les trois développements proposés: cylindre (3.23), ellipse (3.28), approximation (3.29).

Le terme d'interactions dipolaires interfils  $N_{\text{inter}}$  peut également être simplifié en tenant compte du fait que le nombre de nanofils à une distance planaire  $mD$  de l'origine ( $m$  étant un entier) est de  $2\pi mP(D^2/\pi a^2)$ . En remplaçant la somme sur  $\rho_i$  par une somme sur  $m$ ,

$$N_{\text{inter}} = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-(N-1)/2}^{(N-1)/2} \kappa \left[ \frac{\beta_+(h_m - 2nh) + \beta_-(h_m + 2nh)}{\beta_+\beta_-} \right] \quad (3.30)$$

$$\kappa = 2mP D^2/h^2$$

En transformant la somme sur  $n$  en intégrale et pour des petits ratios  $f/N$  ( $h_m \ll L$  ou  $N \gg 1$ ), on peut montrer que (Carignan, 2007) :

$$N_{\text{inter},i} = f_i P \sum_{m=1}^{\infty} \frac{ms}{(m^2 + s^2)^{3/2}} \quad (3.31)$$

La [Figure 3.4](#) montre les valeurs que prend cette sommation en fonction du paramètre  $s$ . On constate que la sommation tend rapidement vers l'unité pour de faibles valeurs de  $s$ . Comme nous l'avons indiqué plus tôt,  $s$  est dans notre cas de l'ordre du nombre de tricouches dans un nanofils et est donc suffisamment grand pour approximer la sommation par 1.

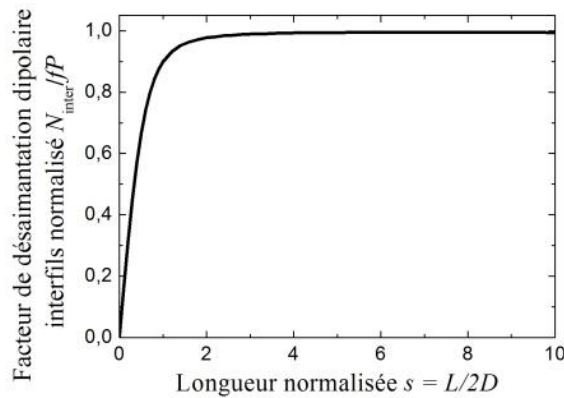


Figure 3.4 : Forme de la courbe de l'Éq.(3.31) en fonction du paramètre  $s$ .

Nous devons calculer cette contribution dipolaire interfils pour chacun des deux sous-réseaux et nous obtenons finalement que le tenseur de désaimantation dipolaire peut s'exprimer comme un facteur de remplissage effectif des couches ferromagnétiques situées dans les autres nanofils:

$$N_{\text{inter}} = N_{\text{inter},1} + N_{\text{inter},2} = (f_1 + f_2)P \quad (3.32)$$

Un autre terme à approximer est le tenseur de désaimantation tenant compte des interactions dipolaire intrafil. En reprenant directement l'Éq. (3.18), nous n'avons pas été en mesure de développer une expression simple pouvant rapidement être interprétée. Nous allons donc traiter les couches intrafils comme des macrospins et nous utiliserons la sommation de l'Éq. (3.17) sur les positions de ces dipôles le long du nanofil. Après quelques développements nous obtenons la forme analytique suivante:

$$\begin{aligned} N_{\text{intra}} &= N_{\text{intra},1} + N_{\text{intra},2} \\ &= -\frac{7}{2} \left(\frac{a}{h}\right)^3 \left[ f_1(c_1 + c_3) \left( \frac{1}{1 - \bar{f}_1^2} \right) + f_2(c_2 + c_3) \left( \frac{1}{1 - \bar{f}_2^2} \right) \right] \end{aligned} \quad (3.33)$$

où  $\bar{f}_i = (f_i + f_{nm1})/2$ . Enfin, pour ce qui est de l'interaction dipolaire entre les couches jumelles, nous reprenons tout simplement le résultat de l'Éq. (3.19) et appliquons la définition des facteurs géométriques  $c$ :

$$N_{12} = \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{c_1 + 2c_3}}} - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{c_1 + 2c_2 + 2c_3}}} \right] \quad (3.34)$$

Les Éqs. (3.29), (3.32), (3.33) et (3.34) seront nos équations de référence pour calculer le champ effectif dans la suite et nous verrons plus loin comme se comportent ces termes d'anisotropie en fonction des différents paramètres géométriques. Même si ces équations ont été développées pour une configuration tricouche, il est important de mentionner que le cas bicouche peut facilement être modélisé en posant  $h_{m1} = h_{m2}$  et  $h_{nm1} = h_{nm2}$  dans les équations précédentes.

### 3.1.4 Densité d'énergie magnétique

Maintenant que nous avons établi les différentes contributions à l'anisotropie d'une couche ferromagnétique, le champ dipolaire global ressenti par cette couche s'écrit donc:

$$\mathbf{B}_1 = -\mu_0(\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1} + \bar{\mathbf{N}}_{\text{forme},1})\mathbf{M}_1 - \mu_0(\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2} + \bar{\mathbf{N}}_{12})\mathbf{M}_2 \quad (3.35)$$

où les différents tenseurs s'écrivent:

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1} &= \begin{pmatrix} -\frac{1}{2}N_{zz,1} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}N_{zz,1} & 0 \\ 0 & 0 & N_{zz,1} \end{pmatrix}, & \bar{\mathbf{N}}_{\text{forme},1} &= \begin{pmatrix} N_{IP,1} & 0 & 0 \\ 0 & N_{IP,1} & 0 \\ 0 & 0 & N_{OOP,1} \end{pmatrix} \\ \bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2} &= \begin{pmatrix} -\frac{1}{2}N_{zz,2} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}N_{zz,2} & 0 \\ 0 & 0 & N_{zz,2} \end{pmatrix}, & \bar{\mathbf{N}}_{12} &= \begin{pmatrix} -\frac{1}{2}N_{12} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}N_{12} & 0 \\ 0 & 0 & N_{12} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.36)$$

où  $N_{zz,i} = N_{\text{intra},i} + N_{\text{inter},i}$  et  $N_{IP,1} = (1 - N_{OOP,1})/2$ .

La densité d'énergie magnétique, dont les unités sont en  $\text{J/m}^3$  ( $\text{erg/cm}^3$  en CGS) associée aux interactions dipolaires sur une couche supérieure s'écrit (on introduit un facteur  $\frac{1}{2}$  pour éviter le double comptage des interactions mutuelles):

$$U_{\text{dip},1} = -\frac{1}{2}\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{B}_1 = \frac{\mu_0}{2}[\mathbf{M}_1 \cdot (\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},1} + \bar{\mathbf{N}}_{\text{forme},1})\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_1 \cdot (\bar{\mathbf{N}}_{\text{dip},2} + \bar{\mathbf{N}}_{12})\mathbf{M}_2] \quad (3.37)$$

En tirant profit du fait que  $2\tilde{N}_{IP,1} + \tilde{N}_{OP,1} = 1$ , et en éliminant les termes constants en angle (puisqu'ils disparaîtront après dérivation) on peut écrire cette équation dans le système de coordonnées sphériques:

$$U_{\text{dip},1} = \frac{\mu_0 M_1^2}{4} \{1 - 3(N_{zz,1} + N_{OP,1})\} \sin^2 \theta_1 - \frac{\mu_0 M_1 M_2}{4} \{N_{zz,2} + N_{12}\} [2 \cos \theta_1 \cos \theta_2 - \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos(\varphi_1 - \varphi_2)] \quad (3.38)$$

De plus, nous définissons les constantes d'anisotropie  $K_1$ ,  $K'_{12}$  et  $K''_{12}$  :

$$K_1 = \frac{\mu_0 M_1^2}{4} \{1 - 3(N_{zz,1} + N_{OP,1})\} \quad (3.39)$$

$$K'_{12} = -\frac{3\mu_0 M_1 M_2 N_{zz,2}}{4} \quad (3.40)$$

$$K''_{12} = -\frac{3\mu_0 M_1 M_2 N_{12}}{4} \quad (3.41)$$

Nous pouvons donc écrire la densité d'énergie magnétique associée aux interactions dipolaires et à l'anisotropie de forme comme:

$$U_{\text{dip},1} = K_1 \sin^2 \theta_1 - \frac{1}{3} K_{12} [2 \cos \theta_1 \cos \theta_2 - \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos(\varphi_1 - \varphi_2)] \quad (3.42)$$

$$K_{12} = K'_{12} + K''_{12} \quad (3.43)$$

On remarque que le premier terme de l'Éq. (3.42) est celui que l'on retrouve pour un réseau bicouche typique tel que développé dans (Carignan, 2006). Il représente les interactions dipolaires de toutes les couches supérieures (1) du réseau sur la couche cible ainsi que son anisotropie de forme. C'est donc comme si le réseau n'était constitué que des couches supérieures (1). Le deuxième terme comptabilise les interactions des couches inférieures (2) avec la couche cible et dépend des angles zénithaux  $\theta_i$  de l'aimantation, de la différence des angles azimutaux  $\varphi_1 - \varphi_2$ , et de l'aimantation  $M_i$  des couches. Le cas particulier où les aimantations sont parallèles, c'est-à-dire où  $\theta_1 = \theta_2 = \theta$  et  $\varphi_1 = \varphi_2$  revient à ajouter directement les contributions dipolaire  $N_{zz,2}$  et  $N_{12}$  à la constante  $K_1$  pour obtenir cette expression de l'énergie:

$$U_{\text{par}} = (K_1 + K_{12}) \sin^2 \theta_1 \quad (3.44)$$

Notons que le cas parallèle devient pertinent lorsque le champ magnétique est assez fort pour saturer l'échantillon. Le cas antiparallèle est traité en annexe E. L'énergie totale du système composé d'une tricouche est donc, avec les conventions mentionnées plus haut, donnée par l'expression suivante:

$$U_{\text{tri}} = U_{\text{dip},1} + U_{\text{Zee},1} + U_{\text{dip},2} + U_{\text{Zee},2} \quad (3.45)$$

où  $U_{\text{Zee},i}$  est l'énergie de Zeeman de l'interaction de l'aimantation avec un champ magnétique externe:

$$U_{\text{Zee},i} = -\mu_0 \mathbf{M}_i \cdot \mathbf{H}_0 = -\mu_0 M_i H_0 [\sin \theta_i \sin \theta_H \cos(\varphi_i - \varphi_H) + \cos \theta_i \cos \theta_H] \quad (3.46)$$

L'énergie totale du système est donc donnée par:

$$U_{\text{tri}} = \sum_{i=1,2} K_i \sin^2 \theta_i + K_{ij} \left[ \cos \theta_i \cos \theta_j - \frac{1}{2} \sin \theta_i \sin \theta_j \cos(\varphi_i - \varphi_j) \right] - \mu_0 M_i H_0 [\sin \theta_i \sin \theta_H \cos(\varphi_i - \varphi_H) + \cos \theta_i \cos \theta_H] \quad (3.47)$$

avec  $j = \begin{cases} 1 & , \text{ si } i = 2 \\ 2 & , \text{ si } i = 1 \end{cases}$ .

### Minimisation de l'énergie du système

Nous pouvons chercher à minimiser l'énergie totale afin de déterminer les positions d'équilibre des aimantations  $\mathbf{M}_1$  et  $\mathbf{M}_2$  par rapport à un champ externe  $\mathbf{H}_0$  donné. Pour cela, il suffit de calculer les dérivées premières de  $U_{\text{tri}}$  (nous noterons  $\partial U / \partial \chi = U_\chi$  et  $\partial^2 U / \partial \chi \partial \eta = U_{\chi\eta}$  pour simplifier). Les dérivées premières permettent de déterminer des extrema locaux de l'énergie et les dérivées secondes de vérifier si ceux-ci sont des minima ou des maxima. Cette approche permet de déterminer les positions d'équilibre des aimantations  $\mathbf{M}_1$  et  $\mathbf{M}_2$ . Nous pouvons aussi utiliser les dérivées secondes de l'énergie dans le calcul des fréquences de résonance ferromagnétique du système. On peut simplifier le résultat en supposant que  $\varphi_1 = \varphi_2 = \varphi_H = 0$ , c'est-à-dire que les angles d'aimantation et du champ magnétique ne varient que dans le plan zénithal. On suppose aussi que  $M_1 = M_2 = M_s$ , c'est-à-dire que les aimantations des couches sont égales à l'aimantation à saturation du matériau. Dans ce cas, la dérivée première devient:

$$U_{\theta_i} = K_i \sin 2\theta_i - \frac{1}{6} (K_{12} + K_{21}) [\sin \theta_i \cos \theta_j + \sin(\theta_i + \theta_j)] + \mu_0 M_i H_0 \sin(\theta_i - \theta_H) \quad (3.48)$$

$$U_{\varphi_i} = 0$$

avec  $j = \begin{cases} 1 & , \text{ si } i = 2 \\ 2 & , \text{ si } i = 1 \end{cases}$ .

On pourra consulter l'annexe D pour l'expression de la dérivée seconde.

### 3.2 Champ effectif d'anisotropie des nanofils tricouches

Les résultats présentés jusqu'à maintenant sont très généraux et seraient intéressants à approfondir dans des travaux futurs. Dans le cadre pratique qui nous intéresse, nous allons restreindre notre analyse au cas où les deux couches formant la tricouche sont en tous points identiques et d'aimantations parallèles ou antiparallèles. Dans ces deux cas, nous avons vu que la densité d'énergie magnétique s'exprimait en  $K \sin^2 \theta$  et l'énergie du système exprimée par l'Éq. (3.47) de l'énergie totale d'une tricouche devient donc:

$$U_{\text{par}} = 2K_{\text{par}} \sin^2 \theta - 2\mu_0 M_s H_0 \cos(\theta - \theta_H) \quad (3.49)$$

lorsque  $\theta_1 = \theta_2 = \theta$  et  $\varphi_1 = \varphi_2 = \varphi_H$  (aimantations parallèles), puis

Les dérivées première et seconde de l'énergie deviennent dans le cas parallèle:

$$\begin{aligned} U_{\theta, \text{par}} &= 4K_{\text{par}} \sin \theta \cos \theta + 2\mu_0 M_s H_0 \sin(\theta - \theta_H) \\ U_{\theta\theta, \text{par}} &= 4K_{\text{par}} \cos 2\theta + 2\mu_0 M_s H_0 \cos(\theta - \theta_H) \end{aligned} \quad (3.50)$$

On peut trouver la condition d'équilibre  $\theta_0$  de l'aimantation pour un certain champ magnétique appliqué d'angle  $\theta_H$  en minimisant l'énergie du système, soit:

$$U_{\theta, \text{par}} = H_{\text{eff}}^{\text{par}} \sin \theta_0 \cos \theta_0 + H_0 \sin(\theta_0 - \theta_H) = 0 \quad (3.51)$$

où nous avons introduit le champ effectif  $H_{\text{eff}}$  donné par:

$$H_{\text{eff}}^{\text{par}} = \frac{2K_{\text{par}}}{\mu_0 M_s} = \frac{2(K_1 + K_{12})}{\mu_0 M_s} \quad (3.52)$$

Nous nous servons donc de ces champs effectifs pour quantifier l'anisotropie effective du réseau de nanofils tricouches. Un champ effectif négatif représente une anisotropie de plan facile (IP), alors qu'un champ effectif positif représente une anisotropie d'axe facile OOP, soit l'axe du nanofil. De plus, l'Éq. (3.51) correspond en fait à la dépendance angulaire de l'aimantation d'une particule monodomaine dans le cadre du modèle classique de rotation rigide de Stoner-Wohlfarth. Ce modèle est pertinent dans le cas d'une expérience de résonance ferromagnétique où l'aimantation est supposée saturée et uniforme. Nous verrons plus loin comment se comportent ce champ effectif en fonction des divers paramètres géométriques du réseau.

### Résonance ferromagnétique

L'étude de la résonance ferromagnétique est l'un des piliers sur lesquels nous avons basé notre compréhension des propriétés magnétiques de nos réseaux de nanofils multicouches. Lorsque les spins des électrons d'un matériau sont soumis à un champ magnétique, celui-ci exerce un moment de force sur les spins et entraîne leur précession autour du champ. La dynamique globale de ces spins, donc de l'aimantation, est exprimée par la relation suivante:

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -|\gamma| \mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H} \quad (3.53)$$

où  $\mathbf{M}$  est l'aimantation du matériau,  $\gamma = g\mu_B = -g|e|\hbar/2m_e$  le rapport gyromagnétique,  $g$  le facteur de Landé,  $|e|$  la charge de l'électron,  $\hbar$  la constante de Planck, et  $m_e$  la masse de l'électron. Le champ  $\mathbf{H}$  contient tous les champs statiques et dynamiques externes et provenant des interactions dipolaires et pourrait éventuellement inclure des champs effectifs provenant de l'anisotropie magnétocristalline. L'Éq. (3.53) ne tient pas compte de l'amortissement de la précession, qui n'est pas nécessaire au calcul des résonances ferromagnétiques. Au besoin, celle-

ci pourra être prise en compte par un paramètre d'amortissement phénoménologique. La précession est expérimentalement entretenue par un faible champ magnétique alternatif perpendiculaire au champ magnétique appliqué. Lorsque les conditions de champ statique et champ alternatif permettent d'activer la résonance naturelle du système, tous les spins précessent à l'unisson et cela se traduit par un pic d'absorption de l'énergie provenant du champ alternatif. Les fréquences que nous étudions dans le cadre de ce projet sont de l'ordre du gigahertz puisque c'est la gamme de fréquence auxquels les dispositifs contenant les nanofils sont destinés.

Dans le cas de nos structures tricouches, l'Éq. (3.53) devrait se présenter plutôt sous la forme d'un système de deux équations couplées, tenant compte de la dynamique de chacune des deux aimantations des couches jumelles. Les structures auraient donc en principe deux modes de résonance. Néanmoins, nous simplifions ici le problème en supposant que l'on travaille essentiellement en régime saturé et que notre configuration expérimentale ne devrait permettre que d'exciter le mode uniforme, , ce qui est confirmé dans la plupart des cas au chapitre 4 par les résultats expérimentaux.

Comme la précession, et donc la fréquence de résonance, est affectée par le champ effectif dû à l'anisotropie du réseau de nanofils, notre but ici est d'établir une relation entre le champ effectif, le champ magnétique appliqué, et la fréquence de résonance. Dans le cadre du modèle présenté plus haut, admettant que l'on excite le mode uniforme d'un réseau magnétiquement saturé, on peut utiliser le formalisme de Smit et Beljers (1955) avec notre anisotropie uniaxiale effective pour montrer que la fréquence de résonance  $\omega_0$  peut s'écrire:

$$\left(\frac{\omega_0}{|\gamma|\mu_0}\right)^2 = \{H_0 \cos(\theta_0 - \theta_H) + H_{\text{eff}} \cos(2\theta_0)\} \times \{H_0 \cos(\theta_0 - \theta_H) + H_{\text{eff}} \cos^2(\theta_0)\} \quad (3.54)$$

avec  $\theta_0$  l'angle de la position d'équilibre de l'aimantation obtenu en minimisant l'énergie totale du système,  $\theta_H$  l'angle du champ magnétique appliqué sur le réseau, et  $H_{\text{eff}}^{\text{par}}$  le champ effectif obtenu un peu plus haut. Il est important de noter que ce modèle n'est valide que dans le cas où les aimantations sont parallèles et saturées. Le cas antiparallèle ne s'applique pas ici puisque cette

configuration est généralement atteinte pour des champs près de 0. Nous verrons au chapitre 4 comment on peut mesurer le champ effectif par une expérience de résonance ferromagnétique et ainsi évaluer la validité du modèle.

### 3.3 Prédictions du modèle d'anisotropie effective

Nous présentons maintenant quelques résultats tirés du modèle d'anisotropie effective développé plus haut. Nous étudierons plus particulièrement le comportement du champ effectif  $H_{\text{eff}}$  en fonction de plusieurs paramètres macroscopiques:

- Étendue latérale du réseau
- Nombre de couches ferromagnétiques
- Facteurs de forme des couches ferromagnétiques
- Épaisseur de la couche d'espacement interne
- Espacement externe entre les tricouches

Nous supposons toujours ici que les couches ferromagnétiques sont identiques et que les aimantations des couches sont parallèles (régime saturé présenté à la section 3.2). Afin de calculer ces champs effectifs, nous pouvons utiliser les expressions numériques développées aux Éqs. (3.18), (3.19), (3.21), et (3.23). Nous pouvons également utiliser les expressions analytiques des Éqs. (3.29), (3.32), (3.33), et (3.34) afin de mieux dégager la physique derrière les termes des équations. Le champ effectif obtenu par les expressions analytiques s'écrit:

$$\begin{aligned}
H_{\text{eff}}^{\text{par}} &= \frac{M_s}{2} [1 - 3\{N_{\text{inter}} + N_{\text{intra}} + N_{\text{OOP}} + N_{12}\}] \\
N_{\text{inter}} &= 2fP \\
N_{\text{intra}} &= -7 \left(\frac{a}{h}\right)^3 \left[ f(c + c') \left( \frac{1}{1 - \bar{f}} \right) \right] \\
N_{\text{OOP}} &= 1 - \frac{\pi}{2} c \\
N_{12} &= -\frac{1}{2} \left[ \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{3c + 2c'}}} - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{c + 2c'}}} \right]
\end{aligned} \tag{3.55}$$

$$f = h_m/h \quad , \quad c = h_m/2a \quad \text{et} \quad c' = h_{nm1}/2a \tag{3.56}$$

Dans ce qui suit, nous présenterons à la fois les résultats tirés de ces formes analytiques ainsi que ceux obtenus par les calculs numériques. Cette analyse nous permettra d'une part de comprendre l'influence de chacun de ces paramètres macroscopiques sur l'anisotropie effective. Cela permettra aussi de déterminer des conditions pour lesquelles le champ effectif du réseau peut tendre vers zéro, c'est-à-dire que son comportement magnétique statique devient isotrope. Nous comparerons ces prédictions avec nos résultats expérimentaux au prochain chapitre.

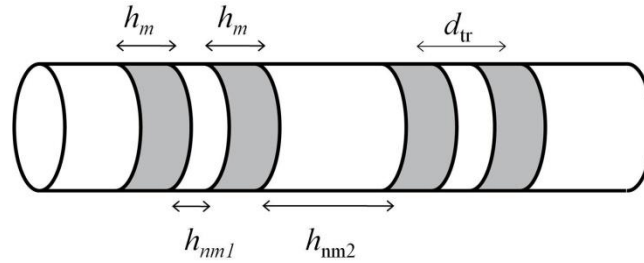


Figure 3.5 : Rappel des dimensions caractéristiques des nanofils tricouches.

Les dimensions caractéristiques en jeu ici sont rappelées à la [Figure 3.5](#). Les champs effectifs seront ici exprimés en valeurs normalisées par l'aimantation à saturation  $H_{\text{eff}}/M_s$ . Rappelons que  $H_{\text{eff}}$  est exprimé en  $\text{Oe} = 1/4\pi \cdot 10^3 \text{ A/m}$  et que  $M_s$  est exprimé en  $\text{emu/cm}^3 = 10^3 \text{ A/m}$ . Donc si  $H_{\text{eff}} = X \text{ Oe}$  et  $M_s = Y \text{ emu/cm}^3$ , alors  $H_{\text{eff}}/M_s = 1/4\pi \cdot X/Y$ . Rappelons également que dans le modèle, une anisotropie effective dans le plan (IP) est représentée par un champ effectif négatif, alors que l'anisotropie hors-plan par un champ effectif positif. Pour ce qui est de l'aimantation à saturation des couches de CoFeB, nous utilisons la valeur  $M_s = 1200 \text{ emu/cm}^3$  qui est la valeur mesurée sur des couches minces de CoFeB (Ciureanu et al., 2005). Il n'est pas clair à ce stade que cette valeur soit effectivement celle retrouvée dans les couches de nanofils, nous discuterons de ce point plus loin. Le rayon des nanofils est ici  $a = 22,5 \text{ nm}$ , soit environ la valeur expérimentale que nous obtenons pour nos échantillons. La distance interfils considérée est de  $D = 110 \text{ nm}$  et la porosité est de  $P = 0,12$ , ce qui sont les valeurs expérimentales que nous mesurons.

### Étendue latérale du réseau

Utilisons les expressions approximatives de l'Éq. (3.55) pour calculer le champ effectif en fonction de l'étendue latérale du réseau. C'est le terme  $N_{\text{inter}}$  qui variera en fonction de cette étendue puisqu'il représente les interactions dipolaires interfils. Le problème est que pour l'approximer nous avons supposé un réseau d'étendue infinie. Nous pouvons facilement contourner cette difficulté en modifiant l'Éq. (3.31) pour ne considérer qu'un réseau fini d'étendue  $n_{\text{max}}$ , soit le nombre de nanofils présents sur une droite allant de l'origine jusqu'au rayon maximal considéré:

$$\begin{aligned}
 N_{\text{inter}} &= fP \sum_{m=1}^{\infty} \frac{ms}{(m^2 + s^2)^{3/2}} - fP \sum_{m=n_{\text{max}}}^{\infty} \frac{ms}{(m^2 + s^2)^{3/2}} \\
 &= fP \left( 1 - \int_{m=n_{\text{max}}}^{\infty} \frac{ms}{(m^2 + s^2)^{3/2}} \right) \\
 &= fP \left( 1 - \frac{l}{(1 + l^2)^{1/2}} \right) = fP \left( 1 - \frac{1}{(1/l^2 + 1)^{1/2}} \right)
 \end{aligned} \tag{3.57}$$

où  $l = s/n_{\max}$ . La [Figure 3.6](#) (gauche) présente la forme de cette équation en fonction de  $n_{\max}$ . Nous avons donc modélisé l'effet du nombre de nanofils sur le champ effectif pour une géométrie similaire à celle des échantillons que nous étudions :  $\text{CoFeB(10)/Cu(10)/CoFeB(10)/Cu(75)} \times 300$ . On remarque que l'approximation de  $N_{\text{inter}}$  par  $fP$  (réseau infini) n'est valide que pour un nombre très grand de nanofils ( $N_{\text{inter}} = 0,99 fP$  pour  $n_{\max} = 10\,000$ ). Par-contre, en pratique  $n_{\max}$  est beaucoup plus grand (de l'ordre de 100 000) donc nous pouvons pour la suite utiliser simplement  $N_{\text{inter}} = fP$ .

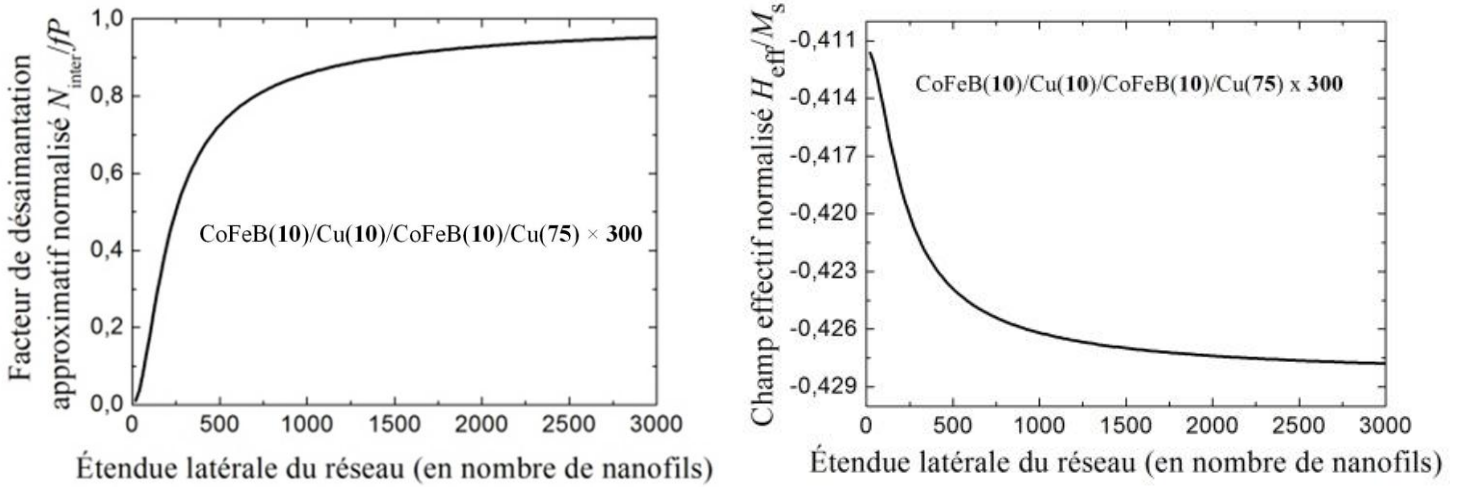


Figure 3.6 : (Gauche) Facteur de désaimantation normalisé interfils en fonction du nombre de nanofils considéré dans le réseau, calculé avec l'Éq. (3.55). (Droite) Champ effectif normalisé calculé à l'aide de l'Éq. (3.55) et en adaptant  $N_{\text{inter}}$  pour un réseau fini.  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ ,  $N = 300$ .

Comme on peut l'observer sur la [Figure 3.6](#) (droite), le champ effectif tend à diminuer (augmenter négativement) lorsque la taille du réseau augmente et atteint un plateau pour une taille assez grande. Cela signifie que plus le réseau est étendu, plus l'anisotropie magnétique s'accroît dans le plan (IP). Cela peut s'expliquer par la nature des interactions dipolaires entre les nanofils comme on peut le voir sur la [Figure 3.7](#). En effet, des interactions intra-fils et inter-fils se produisent lorsqu'on aimante les nanofils. Selon la direction du champ magnétique (et donc de l'aimantation) ces interactions n'auront pas le même effet global sur le réseau. Lorsqu'un champ magnétique IP sature l'aimantation des couches dans le plan, le champ dipolaire de chaque nanofil a un effet net positif sur ses voisins, c'est-à-dire que son champ dipolaire inter-fil tend à

aimer les couches voisines dans le même sens que leur aimantation. Dans le cas OOP (Figure 3.7 droite), c'est l'effet inverse qui se produit: le champ dipolaire inter-fil a un effet négatif sur les couches voisines et tend à les désaimanter.

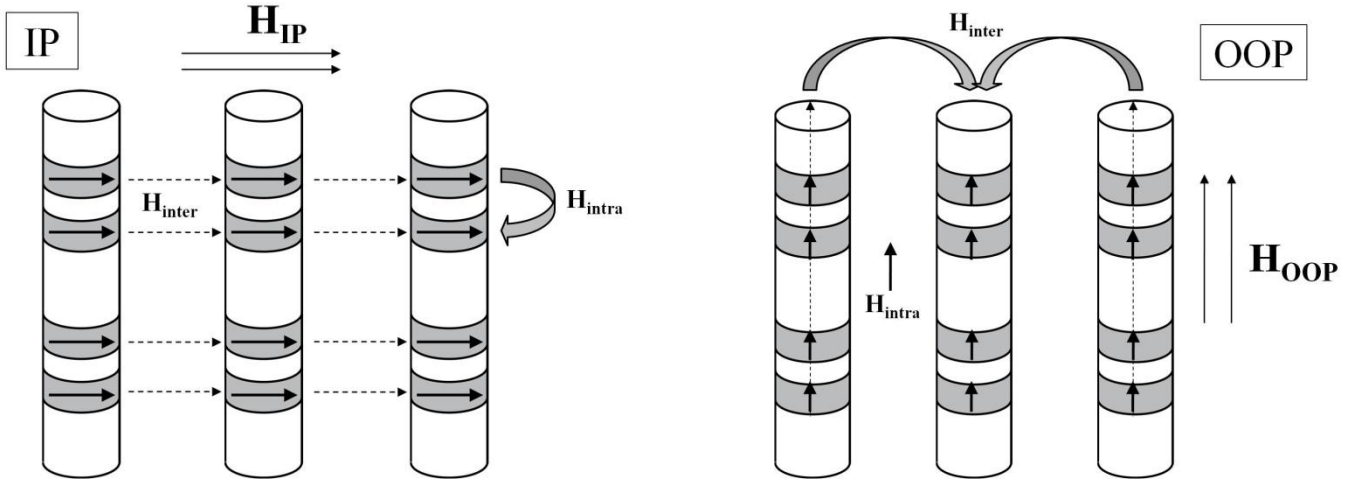


Figure 3.7 : Effet des interactions dipolaires en nanofils voisins selon la direction du champ magnétique pour les configurations IP et OOP.

Ainsi, plus l'étendue latérale du réseau est importante plus l'anisotropie magnétique s'accroît dans le plan. En ajoutant des nanofils dans le réseau, ceux-ci viennent superposer leur champ dipolaire interfils et accroître l'effet positif d'aimantation. La contribution intrafil ne s'en voit pas modifiée ici et c'est pourquoi l'effet net est une augmentation de l'anisotropie dans le plan. Ce comportement est bien modélisé par l'Éq. (3.55) où le seul terme dépendant de la taille du réseau provient de  $N_{inter}$ . Nous avons également calculé le champ effectif pour la même configuration en utilisant les équations numériques (Éqs. (3.18), (3.19), (3.21), et (3.52)). Les résultats sont présentés à la Figure 3.8.

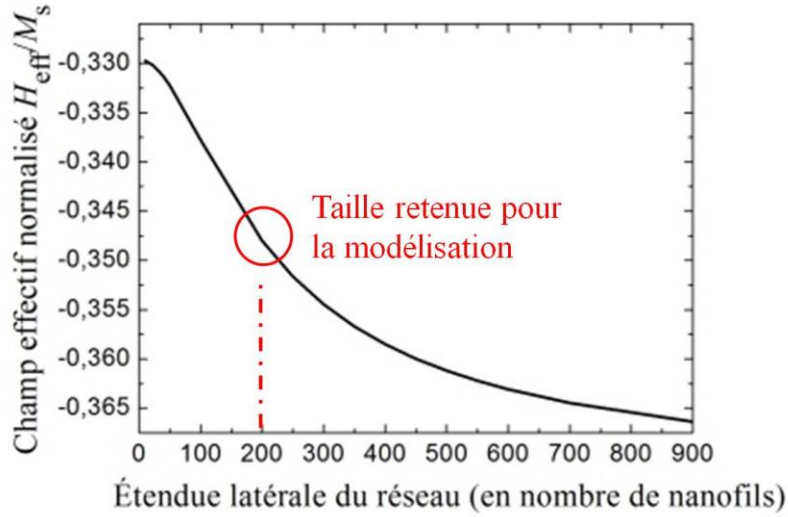


Figure 3.8 : Champ effectif normalisé en fonction de la taille de l'échantillon en utilisant les expressions numériques. La taille est exprimée ici en nombre de nanofils sur un segment à partir du centre du réseau jusqu'à sa limite. Par exemple, pour une taille de 200 nanofils, le nombre total de nanofils correspond à environ  $400 \times 400$ .  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ ,  $N = 300$ .

Nous observons le même comportement du champ effectif que pour les équations analytiques. Les résultats numériques que nous présenterons dans les sections suivantes seront basés sur une étendue latérale de 200 nanofils. Cela correspond approximativement à un réseau de  $400 \times 400$  nanofils. Nous avons choisi cette valeur par souci d'obtenir des résultats le plus précis possible dans un temps raisonnable. En effet, en passant d'une taille de 700 à 200 nanofils, nous perdons moins de 4% de précisions pour un temps de calcul très considérablement réduit (1/10 du temps). Les équations analytiques supposeront quant à elles une étendue infinie, ce qui reflète mieux la réalité que de considérer une étendue latérale de 200 nanofils.

Nous remarquons enfin un écart assez significatif entre les calculs numériques et les équations analytiques. Cela est dû en partie à la simplification de  $N_{\text{OOP}}$  qui apporte une erreur importante lorsque  $c$  est plus grand que 0,2 (dans notre cas  $c = 0,22$ ).

### Nombre de couches ferromagnétiques

Le nombre  $N$  de couches ferromagnétiques présent dans un nanofil est aussi un paramètre important puisqu'il joue sur l'intensité du signal magnétique, sur l'anisotropie et sur la résistance du nanofil dans le cadre d'une expérience de GMR. Nous nous focaliserons ici sur la variation de l'anisotropie en fonction du nombre de couches ferromagnétiques. On remarque que dans l'Éq. (3.55) aucun des termes ne dépend explicitement du nombre de couches dans les nanofils. La raison en est que nous avons simplifié les termes  $N_{\text{inter}}$  et  $N_{\text{intra}}$  en faisant l'hypothèse que  $\gg 1$ . Dans le cas de  $N_{\text{intra}}$ , il est facile de montrer que la contribution des couches lointaines sont rapidement négligées (dépendance du champ dipolaire en  $1/r^3$ ). Comme  $N_{\text{inter}}$  représente des interactions de longues portées, c'est le terme qui sera susceptible de varier le plus en fonction du nombre de couches ferromagnétiques. Pour calculer cette dépendance, nous reprenons l'Éq. (3.31) tenant compte du nombre de couches, et nous adaptons l'Éq. (3.55) pour le champ effectif. La figure suivante présente les résultats du champ effectif en fonction du nombre de couches dans un nanofils calculé par l'équation analytique ainsi que par calcul numérique.

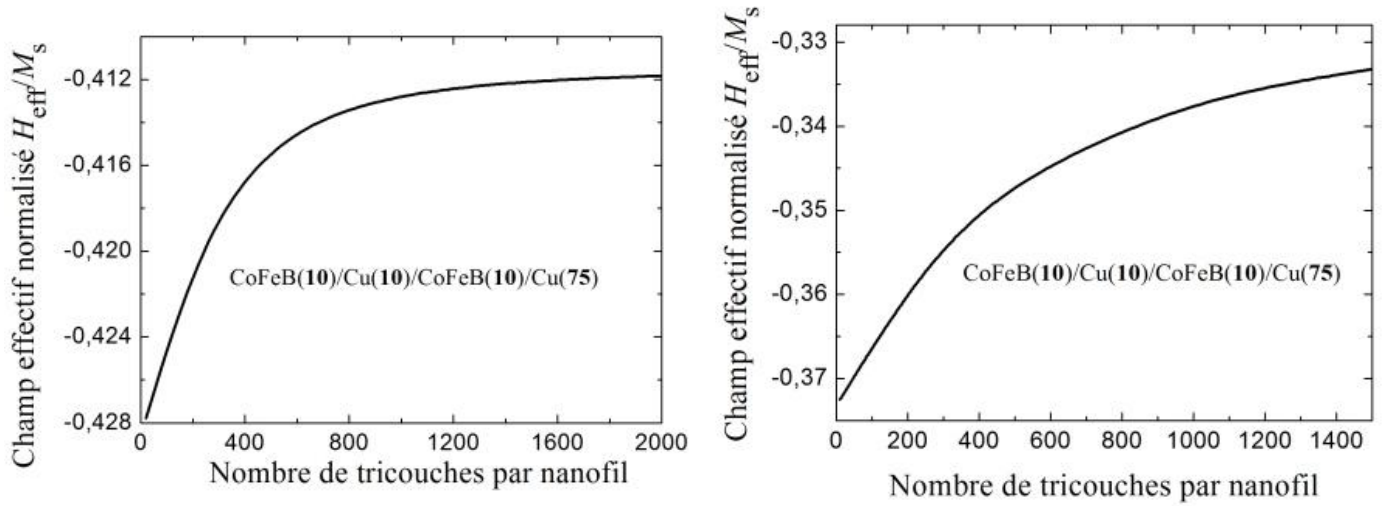


Figure 3.9 : Champ effectif normalisé en fonction du nombre de nombre de tricouches obtenu par l'Éq. (3.55) (gauche) et par calcul numérique (droite). Étendue du réseau = 200 nanofils le nombre total de nanofils correspond à environ  $400 \times 400$ .  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ .

On observe que le champ effectif augmente bien avec le nombre de couches, ce qui signifie que l'anisotropie hors-plan (OOP) est accentuée. Ce comportement est consistant avec le schéma présenté à la [Figure 3.7](#). En effet, en ajoutant des couches dans les nanofils sans pour autant augmenter l'étendue latérale du réseau, on favorise les interactions interfils qui ont un effet démagnétisant et cela se traduit par une légère diminution du terme  $N_{\text{inter}}$ .

### Épaisseurs des couches ferromagnétiques

L'épaisseur des couches de CoFeB est également un paramètre important puisqu'il apparaît dans tous les termes de l'anisotropie. Deux facteurs géométriques sont importants en ce qui concerne  $h_{\text{nm}}$ : les rapports  $f$  (facteur de remplissage des couches ferromagnétiques) et  $c$  (aspect de forme). La figure suivante présente la dépendance du champ effectif en fonction de ces deux facteurs géométriques:

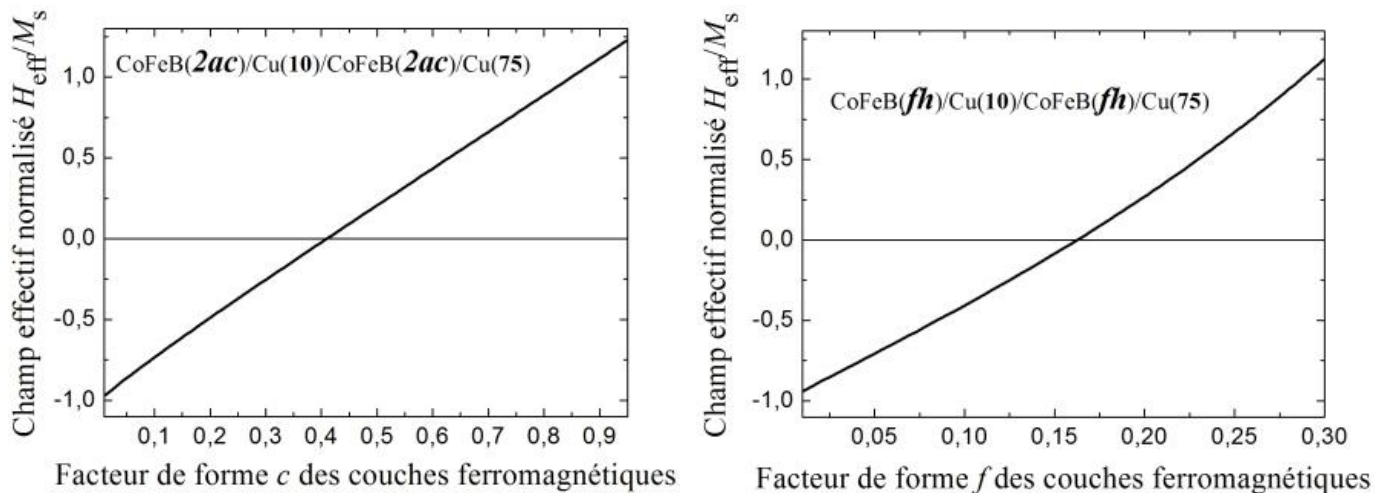


Figure 3.10 : Champ effectif normalisé en fonction des facteurs géométriques des couches ferromagnétiques, obtenu par l'Éq. (3.55).  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ .

Il est important de noter ici que ces courbes ne sont en fait valides que pour de faibles valeurs de  $c$  (moins de 0,2) sinon cela engendre une erreur importante sur le terme  $N_{\text{OOP}}$ . C'est pourquoi on observe une différence significative de la forme de la courbe avec celle obtenue par calcul numérique ([Figure 3.11](#)).

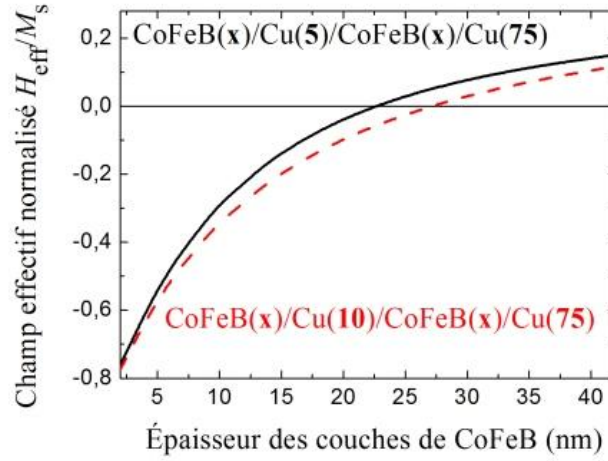


Figure 3.11 : Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur des couches ferromagnétique pour les nanofils tricouches. Étendue du réseau = 200 nanofils le nombre total de nanofils correspond à environ  $400 \times 400$ .  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ ,  $N = 300$ .

Dans ce dernier cas nous observons la même tendance mais avec un début de plateau après 50 nm. L'anisotropie de forme est ici le terme qui domine la variation du champ effectif, passant même d'un plan facile (IP) à un axe facile hors-plan (OOP). Le contrôle de l'épaisseur est crucial pour les faibles épaisseurs comme on peut le remarquer sur ces figures où de fortes variations se produisent en dessous de 20 nm. Comme ce sont des gammes d'épaisseurs qui nous intéressent (surtout les faibles épaisseurs pour la GMR), la caractérisation structurale présentée au chapitre 2 doit être en mesure de donner des valeurs précises d'épaisseurs de CoFeB.

Nous pouvons également constater que ces courbes passent par un champ effectif nul, c'est-à-dire que pour certaines conditions géométriques les différentes interactions inter-fils et intra-fils ne favorisent pas une configuration particulière (IP ou OOP). Le réseau est donc en principe isotrope magnétiquement dans ce cas. À l'aide de ce modèle nous pourrions donc en principe dresser une cartographie en 2 ou 3 dimensions des conditions nécessaires pour obtenir des échantillons isotropes. Pour ce faire nous devons tout d'abord vérifier la robustesse du modèle en comparant ces prédictions avec les résultats expérimentaux.

### Épaisseur de la couche d'espacement interne

Un autre paramètre très important est l'épaisseur de la couche d'espacement au sein d'une tricouche. Ce terme apparaît explicitement dans les facteurs  $N_{12}$  et  $N_{\text{intra}}$ . Comme on peut l'observer à la figure suivante, le terme d'interaction entre les deux couches jumelles domine complètement la variation du champ effectif en fonction de  $h_{\text{nm}1}$ . Ceci est dû à la proximité des deux couches jumelles résultant en une forte interaction dipolaire ainsi qu'à l'isolement des tricouches entre elles ( $h_{\text{nm}2}$ ). L'intensité de cette interaction diminue lorsque  $h_{\text{nm}1}$  augmente et c'est pourquoi le  $N_{12}$  tend vers 0 lorsque  $h_{\text{nm}1}$  devient assez grand.

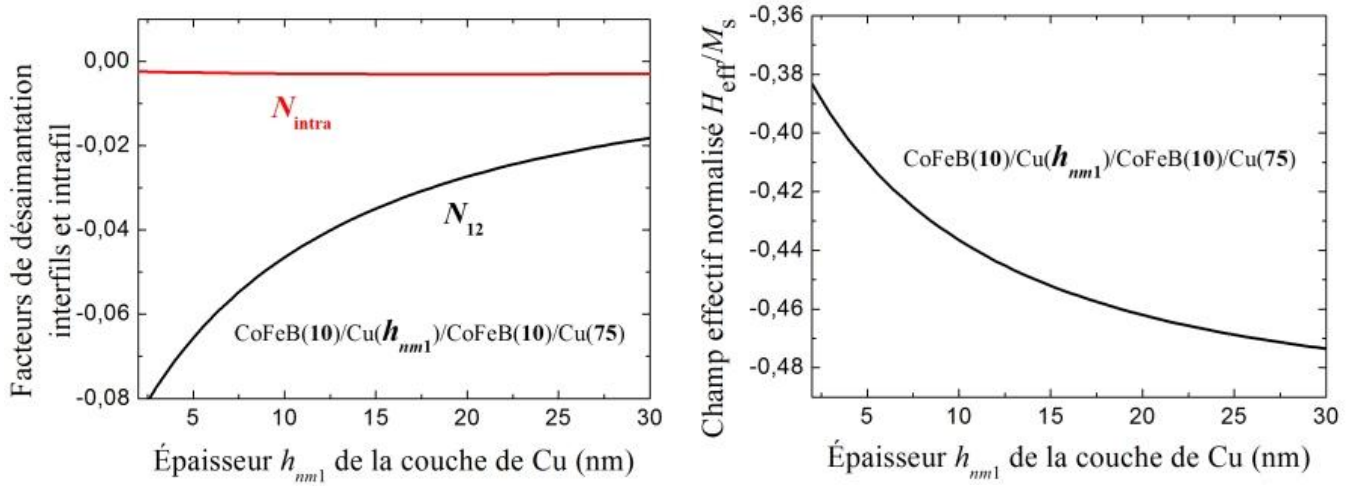


Figure 3.12 : (Gauche) Facteurs de désaimantation  $N_{12}$  et  $N_{\text{intra}}$  en fonction de l'épaisseur  $h_{\text{nm}1}$  de Cu. (Droite) Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur  $h_{\text{nm}1}$ , obtenu par l'Éq. (3.55).  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ .

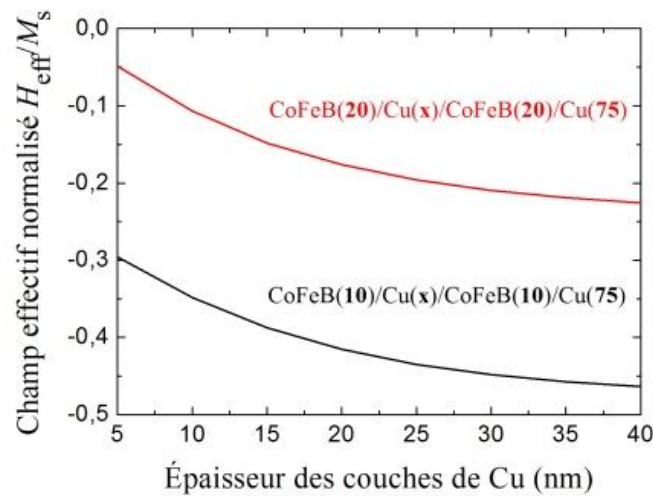


Figure 3.13 : Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur des couches non-magnétiques intercalaires ( $h_{\text{nm1}}$ ) pour les nanofils tricouches. Étendue du réseau = 200 nanofils le nombre total de nanofils correspond à environ  $400 \times 400$ .  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ .

On voit donc que les tricouches sont effectivement bien isolées les unes des autres et que l'ajustement de la distance entre les couche jumelles a un impact très significatif sur la réponse magnétique du réseau.

### Espacement externes entre tricouches

Le dernier paramètre géométrique à étudier est la couche de Cu séparant les tricouches entre elles. Cette couche a été intégrée à nos nanofils afin de découpler les interactions entre les différentes couches ferromagnétiques pour isoler les contributions dipolaires des plus proches voisins. L'épaisseur  $h_{\text{nm2}}$  apparaît explicitement dans les termes  $N_{\text{inter}}$  et  $N_{\text{intra}}$  mais nous voyons bien dans la figure suivante que les interactions intrafil sont beaucoup plus affectées par une variation de cette épaisseur.

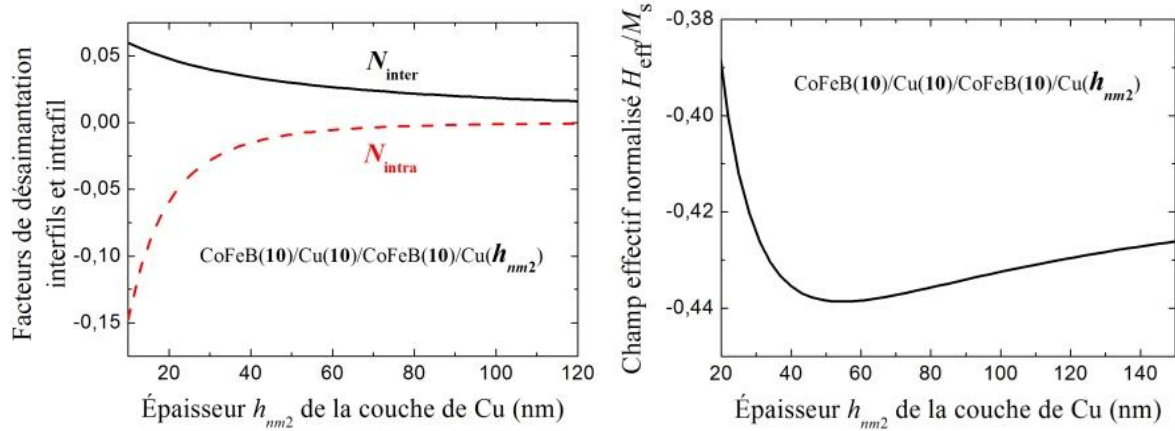


Figure 3.14 : (Gauche) Facteurs de désaimantation  $N_{12}$  et  $N_{intra}$  en fonction de l'épaisseur  $h_{nm2}$  de Cu. (Droite) Champ effectif normalisé en fonction de l'épaisseur  $h_{nm2}$ , obtenu par l'Éq. (3.55).  $a = 22,5$  nm,  $D = 110$  nm,  $P = 0,12$ .

On observe bien que les termes de désaimantation dipolaires intrafil et interfils tendent éventuellement vers 0 pour de grandes valeurs de  $h_{nm2}$ , ce qui ne laisse que les contributions de l'anisotropie de forme et de l'interaction au sein de la tricouche. Il est donc possible, en choisissant judicieusement l'épaisseur  $h_{nm2}$ , d'isoler complètement les tricouches et de contrôler finement l'anisotropie effective avec  $h_m$  et  $h_{nm1}$ . Toutefois, un obstacle important est la lenteur significative de l'électrodéposition des couches de Cu (dans un bain mix CoFeB/Cu) et c'est pourquoi en pratique nous n'avons pas cherché à aller plus loin que  $h_{nm2} = 100$  nm.

### 3.4 Synthèse

Nous avons développé un modèle d'anisotropie effective basé sur les interactions dipolaires entre couches ferromagnétiques et sur l'anisotropie de forme de ces couches. Ce modèle a été inspiré de celui développé par (Carignan, 2006) et généralisé pour un système de nanofils tricouches dont les aimantations ne sont pas rigidement liées entre elles. Cela nous a permis de déterminer l'énergie du système et de calculer les dérivées premières et secondes. Nous pouvons donc utiliser ces résultats pour une étude plus approfondie de systèmes tricouches non rigidement liés.

Un aspect important de ce développement a été de mettre en évidence l'interaction entre les deux couches jumelles, qui prend toute son importance dans le cas des tricouches isolées les unes des autres. Nous avons également généralisé les expressions simplifiées des facteurs de désaimantation afin de tenir compte des différents facteurs géométriques caractéristiques du réseau. Nous avons également développé des expressions analytiques simples afin de mieux faire ressortir le comportement de l'anisotropie en fonction des divers paramètres géométriques.

Nous avons vu à quel point le champ effectif est très sensible à certains paramètres géométriques, notamment pour les faibles épaisseurs de couches. Cela pourrait poser problème puisque, comme on l'a vu au chapitre 2, notre capacité à contrôler l'épaisseur des couches est pour l'instant limitée et la méthode de caractérisation de l'épaisseur pas encore au point. Toutefois, cette sensibilité peut aussi être intéressante d'un point de vue ingénierie puisqu'on se retrouve potentiellement avec une méthode pour caractériser expérimentalement les épaisseurs des couches par mesures magnétiques. Cela est d'autant plus vrai que lorsque les tricouches sont complètement isolées les unes des autres la relation entre les facteurs géométriques et le champ effectif s'en voit simplifiée. Une limite évidente de nos équations analytiques est de ne pas traiter correctement les épaisseurs plus importantes de couches, cela en partie à cause du terme  $N_{\text{OOP}}$  qui suppose des couches très minces par rapport au diamètre des nanofils. Cette limite explique en bonne partie l'écart obtenu pour les champs effectifs calculés numériquement et avec les équations analytiques.

Lors de l'interprétation des résultats expérimentaux et la comparaison avec le modèle, plusieurs éléments devront être pris en compte pour cadrer les limites de validité du modèle. L'une de ces limites est le fait de négliger l'anisotropie magnétocristalline. Les résultats de caractérisation semblent pointer vers une structure polycristalline dans les couches de CoFeB. Dans ce cas, on anticipe un moyennage des anisotropies cristallines qui nous conduit à négliger ces contributions. Au besoin des termes d'anisotropies cristallines peuvent être rajoutés assez facilement au modèle. Il n'y a toutefois rien qui garantit que les couches de CoFeB nanométriques

ont la même structure qu'une couche mince beaucoup plus épaisse. Enfin, nous avons également négligé les interactions d'échange entre les couches ferromagnétiques, ce qui semble a priori raisonnable au vue des épaisseurs considérées ici. Toutefois, il n'est pas clair que ces interactions d'échange puissent être négligeables dans les nanofils multicouches pour des espacements de Cu de quelques nanomètres.

## CHAPITRE 4 MESURE DES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

Nous avons étudié les propriétés magnétiques des réseaux de nanofils multicouches en mesurant leur comportement sous un champ magnétique. Deux types de mesure ont été effectués dans notre cas, soit la réponse de l'aimantation globale du réseau en fonction de l'intensité et de la direction d'un champ magnétique statique appliqué, ainsi que la résonance ferromagnétique de l'aimantation en précession autour d'un champ magnétique appliqué. Dans le premier cas on se place dans un régime magnétostatique alors que le deuxième cas fait intervenir la dynamique de l'aimantation. Ce chapitre présente les résultats expérimentaux de magnétométrie statique et dynamique obtenus sur nos réseaux de nanofils multicouches. Ces résultats nous permettront de confronter le modèle du chapitre 3 et nous aideront de mieux comprendre l'influence des paramètres géométriques du réseau sur l'anisotropie effective. Nous mettrons donc ces résultats en perspectives par rapport aux mesures de microscopie (chapitre 2) et à la modélisation de l'anisotropie effective (chapitre 3). Enfin nous démontrerons la faisabilité des réseaux de nanofils magnétiquement isotropes.

### 4.1 Propriétés magnétostatiques

L'étude des propriétés magnétostatiques des réseaux de nanofils multicouches a été effectuée ici en mesurant leurs courbes d'hystérésis de l'aimantation en fonction du champ magnétique (voir [Figure 4.1](#)). Les principaux paramètres que l'on peut extraire de ces courbes sont l'aimantation rémanente ( $M_r$ ), le champ coercitif ( $H_c$ ), le champ à saturation ( $H_s$ ), et la susceptibilité apparente ( $\chi_{app}$ ) qui représente la pente de l'aimantation par rapport au champ magnétique près de la coercivité. Tous ces paramètres dépendent de la géométrie du réseau de nanofils et du type de matériau utilisé.

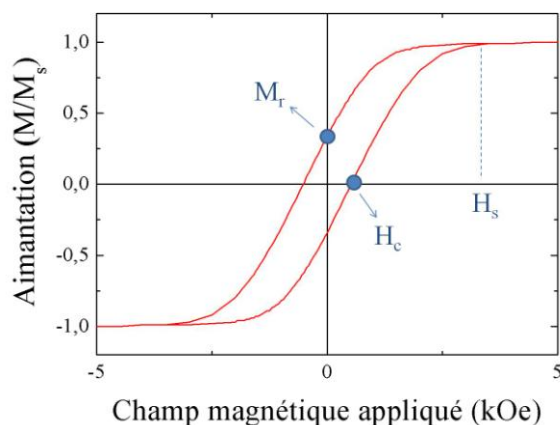


Figure 4.1 : Courbe d'hystérésis typique de l'aimantation en fonction du champ magnétique avec la définition des principales grandeurs la caractérisant: l'aimantation rémanente ( $M_r$ ) à saturation ( $M_s$ ), le champ coercitif ( $H_c$ ) et de saturation ( $H_s$ ).

Pour la suite, nous utiliserons le système CGS et non le système SI afin d'exprimer les unités de mesure puisque ce système est répandu dans la littérature magnétique. Nous rappellerons à chaque fois les facteurs de conversion suivant: le champ magnétique  $H$  sera exprimé en Oe ( $4\pi 10^{-3}$  Oe = 1 A/m) et l'aimantation  $M$  sera exprimé en emu/cm<sup>3</sup> (1 emu/cm<sup>3</sup> = 1 kA/m).

#### 4.1.1 Magnétométrie à échantillon vibrant (VSM)

Les courbes d'hystérésis ont été mesurées par une technique de magnétométrie à échantillon vibrant, ou VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*) de modèle EV9 de la compagnie ADE Technologies. Le principe de la mesure est schématisé à la [Figure 4.2](#). L'échantillon est collé à une tige de quartz et positionné entre deux électroaimants produisant un champ magnétique statique et homogène sur le volume de l'échantillon (si celui-ci est assez petit). Ce champ, pouvant aller de -2,2 T à 2,2 T, permet donc d'aimanter le matériau. La tige de quartz est reliée à une tête de contrôle permettant de faire vibrer sinusoïdalement la tige (et donc l'échantillon) à une fréquence déterminée (75 Hz dans notre cas). Quatre bobines de détection sont placées de part et d'autre de l'échantillon tel que montré à la [Figure 4.2](#). Comme un champ magnétique émane de l'échantillon aimanté en vibration, chaque bobine sera traversée par un flux

magnétique variant dans le temps, ce qui induira donc une force électromotrice dans les bobines comme le stipule la loi de Lenz:

$$V = -\frac{d\varphi}{dt} \propto \frac{dB}{dt}$$

où  $V$  est la tension induite dans les bobines,  $\varphi$  est le flux magnétique et  $B$  la densité de flux magnétique. On sait que cette variation de flux est proportionnelle à la fréquence de vibration  $\omega$  et au moment magnétique  $m$  de l'échantillon:

$$V = Cste \times m\omega \sin(\omega t)$$

Un échantillon de calibration (dans notre cas un disque mince de Ni) permet de déterminer la constante de proportionnalité. Un amplificateur *lock-in* permet de concentrer la récolte du signal de tension sur la fréquence de vibration de l'échantillon. Des détails complémentaires sur la calibration et le traitement du signal sont présentés par (Carignan, 2008).

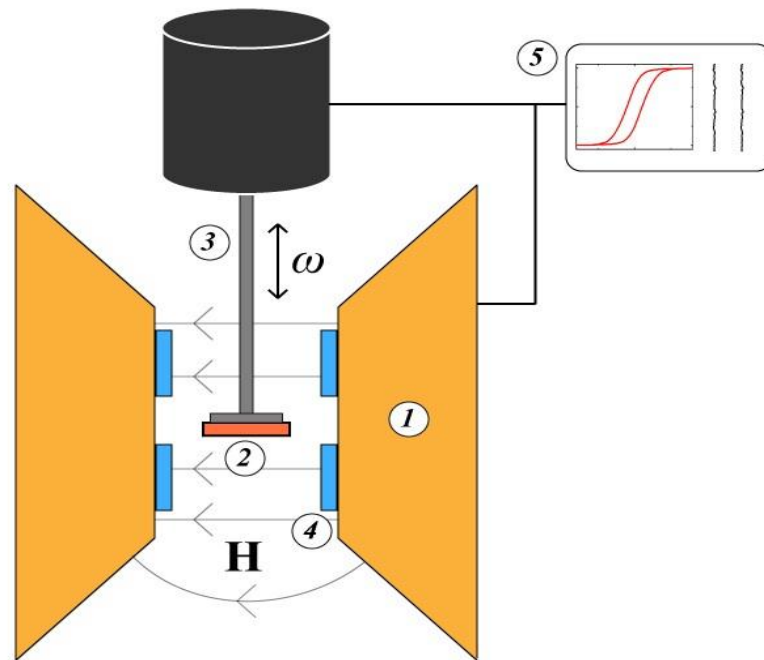


Figure 4.2 : Schéma simplifié du principe de la mesure par VSM. L'électroaimant (1) produit un champ magnétique homogène entre ses pôles. L'échantillon (2) est fixé à la tige (3) et vibre à une fréquence  $\omega$ . La tension induite dans les bobines de détection (4) est analysée par le système et le contrôle des variables s'effectue par un logiciel (5).

Le système VSM offre une grande liberté dans la mesure de l'aimantation puisqu'il permet de varier le champ magnétique de -2 à 2 T (-20 à 20 kOe), d'effectuer la rotation de l'échantillon autour de l'axe du porte-échantillon, ainsi que de positionner l'échantillon parallèlement ou perpendiculairement à l'axe du porte-échantillon. Cela permet d'explorer plusieurs configurations de champs et de réponses magnétiques. L'acquisition des données et le contrôle des variables (champs, angles, températures) se font automatiquement par le logiciel du fournisseur.

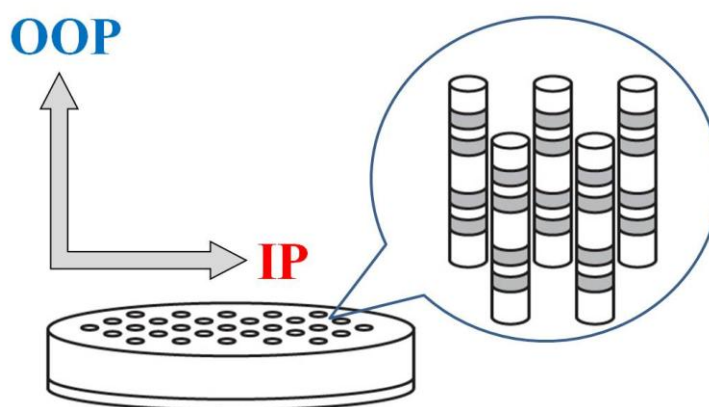


Figure 4.3 : Rappel des conventions sur les deux directions principales d'anisotropie. La direction IP représente une direction quelconque dans le plan de la couche alors que OOP représente la direction de l'axe des nanofils.

### Détermination expérimentale du champ effectif par VSM

Nous avons vu au chapitre précédent que l'anisotropie magnétique du réseau de nanofils pouvait être quantifiée par un champ effectif dans un modèle d'anisotropie uniaxiale où l'on supposait que l'aimantation était uniforme dans toutes les couches. Cette hypothèse est raisonnable dans le cas d'une expérience de résonance ferromagnétique lorsque l'échantillon est saturé et l'aimantation est uniforme (modèle de rotation rigide de l'aimantation). Toutefois, cette hypothèse n'est pas respectée dans le cas d'une mesure VSM où le champ magnétique passe par de faibles valeurs (en absolu) et donc où les couches sont partiellement désaimantées. Dans ce cas, (Carignan, 2007) montre qu'il est possible de définir un champ effectif dans le cadre d'un modèle de champ moyen, où l'on considère que l'aimantation perpendiculaire au champ

magnétique appliqué est nulle en moyenne sur la somme de toutes les couches. Cela revient à modéliser les courbes d'hystérésis tel que montré à la Figure 4.4.

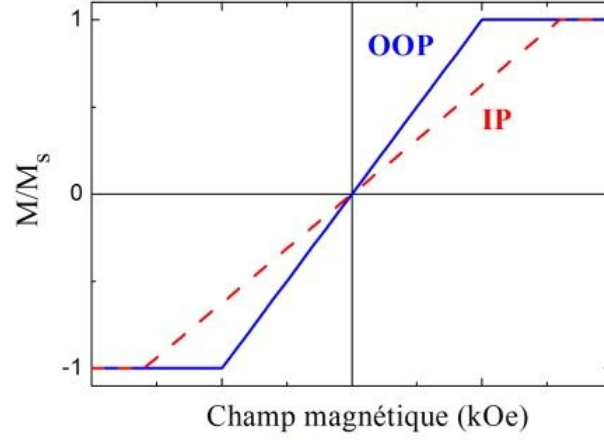


Figure 4.4 : Courbes d'hystérésis dans le cadre du modèle de champ moyen.

On montre que si l'anisotropie est dominée par les interactions dipolaires entre les couches, le champ effectif peut s'écrire comme:

$$H_{\text{eff}} = \frac{1 - \tilde{\chi}_{\text{ip}}/\tilde{\chi}_{\text{oop}}}{\tilde{\chi}_{\text{ip}}} \quad (4.1)$$

avec  $\tilde{\chi}_{\text{ip}} = \chi_{\text{ip}}/M_s$  et  $\tilde{\chi}_{\text{oop}} = \chi_{\text{oop}}/M_s$  sont les susceptibilités apparentes normalisées pour les directions IP et OOP. D'un point de vue expérimental, il est possible de mesurer ce champ effectif à l'aide des courbes d'hystérésis prises dans les deux directions principales d'anisotropie (IP et OOP). La formule demeure valide même en présence d'hystérésis. Les susceptibilités apparentes représentent alors les pentes des courbes d'hystérésis au point  $M = 0$  (champ coercitifs). Dans le cas montré à la [Figure 4.4](#), l'échantillon est caractérisé par une anisotropie hors-plan (OOP) puisque sa susceptibilité est plus grande que dans l'autre direction.

### 4.1.2 Propriétés magnétostatiques des nanofils bicouches

Nous débutons par la présentation des résultats sur les nanofils bicouches, c'est-à-dire ceux caractérisés par une unité périodique de type  $\text{CoFeB}(\mathbf{h}_m)/\text{Cu}(\mathbf{h}_{nm})$ . Rappelons que la structure bicouche n'est pas au cœur de notre analyse mais cela vaut la peine de les traiter comme un cas particulier des tricouches lorsque  $h_{m1} = h_{m2}$  et  $h_{nm1} = h_{nm2}$ . De plus, comme elle constitue la configuration classique traitée par beaucoup de groupes de recherches s'intéressant au sujet, nous pourrions mettre en évidence les différences entre ces deux configurations de façon expérimentale. Les dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils bicouches sont présentées à la [Figure 4.5](#).

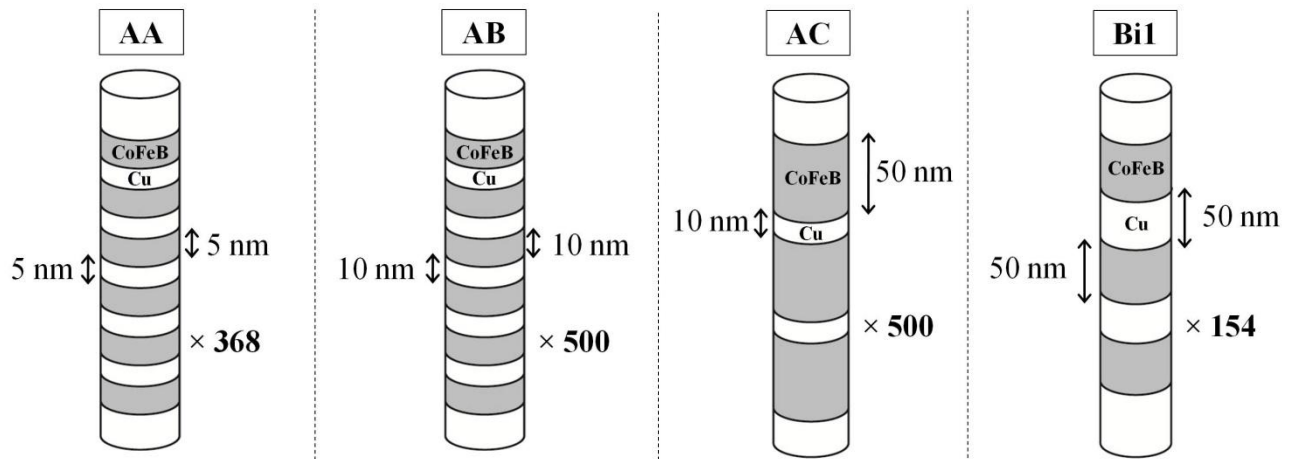


Figure 4.5 : Dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils bicouches obtenus expérimentalement.

La première analyse que l'on peut effectuer est de comparer les courbes d'hystérésis obtenues pour les directions IP et OOP. Cela nous donne une indication rapide de l'anisotropie du réseau en comparant les champs effectifs déterminés expérimentalement dans le cadre du modèle de champ moyen. La [Figure 4.6](#) présente les courbes d'hystérésis mesurées par VSM sur quatre échantillons de nanofils bicouches.

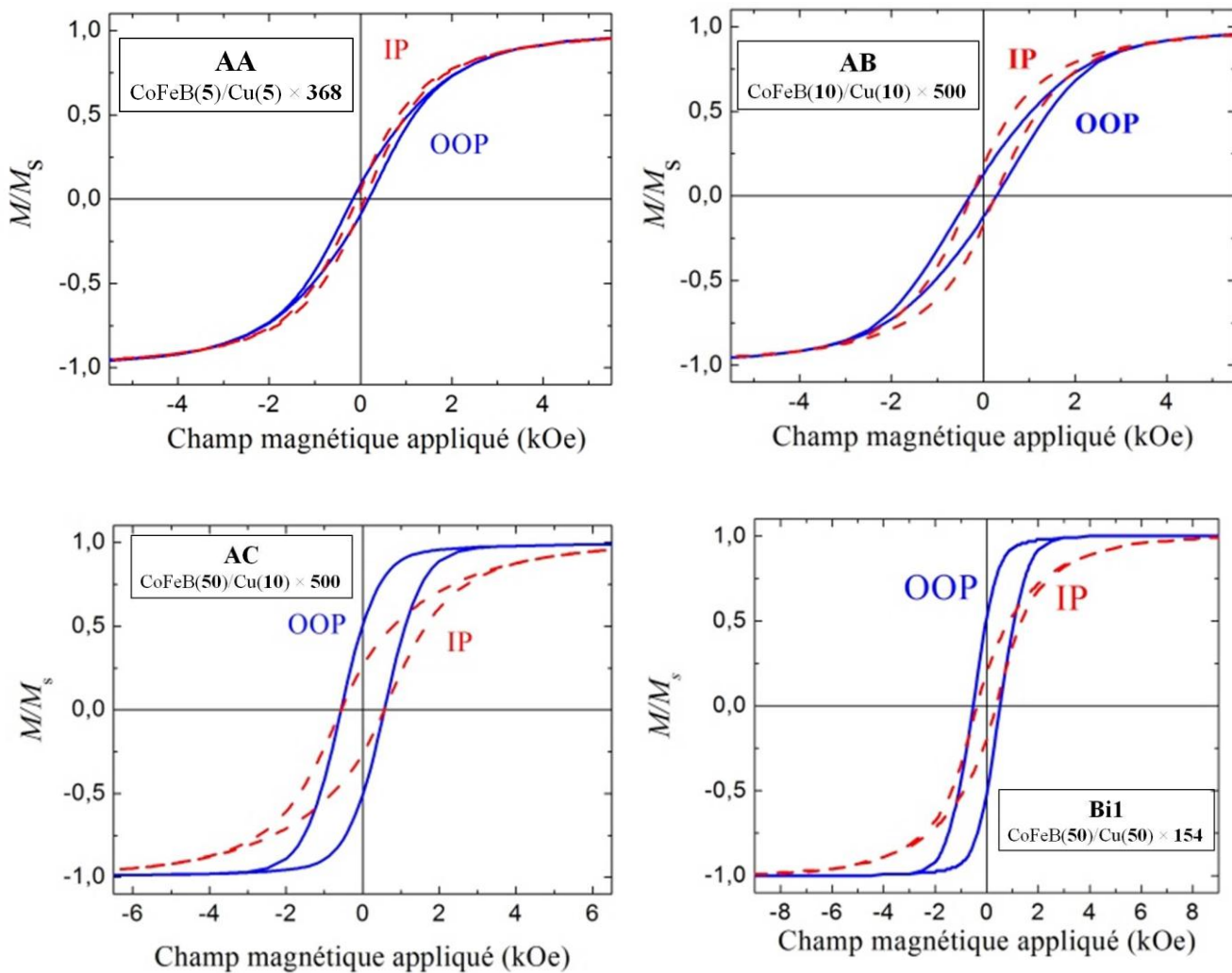


Figure 4.6 : Aimantation normalisée en fonction du champ magnétique ( $4\pi 10^{-3}$  Oe = 1 A/m) de quatre réseaux de nanofils bicouches mesurées par VSM (directions du champ IP et OOP). Les épaisseurs ciblées des couches de CoFeB et de Cu sont indiquées en encadré pour chaque courbe. L'aimantation est normalisée par la valeur d'aimantation au champ maximum ( $2T = 20$  kOe). Nous avons ici  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm.

Parmi ces quatre échantillons, deux (AA, AB) sont caractérisés par une faible anisotropie de plan facile (IP) due à leur géométrie. La faible épaisseur de leurs couches de CoFeB (respectivement 5 et 10 nm) par rapport au diamètre des nanofils (45 nm) accentue l'anisotropie de forme dans le plan. Néanmoins, le faible espacement de Cu entre ces couches (respectivement 5 et 10 nm) favorise une anisotropie OOP puisque cela augmente la contribution des champs

dipolaires intra-fils. La combinaison des ces deux effets antagonistes semblent engendrer un comportement faiblement anisotrope dans le plan. Cela indique que cette gamme d'épaisseurs pour  $h_m$  et  $h_{nm}$  permettrait d'obtenir un comportement isotrope dans les nanofils bicouches, en ajustant finement ces paramètres.

Les deux autres échantillons (AC, Bi1) ont un axe facile marqué dans la direction hors-plan (OOP). Ceci est principalement dû à une couche de CoFeB épaisse (50 nm) par rapport au diamètre (45 nm). Il semble ici que la forme plus allongée des couches domine et montre une anisotropie effective OOP. En faisant passer l'épaisseur de Cu de 10 à 50 nm, on constate effectivement un rapprochement des deux courbes reflétant la diminution du champ effectif avec l'atténuation des interactions intra-fils. On remarque enfin que dans (AC, Bi1) l'approche à saturation est très différente selon que le champ magnétique est IP ou OOP. Dans la configuration OOP le champ sature le réseau à environ 3 kOe alors que pour la configuration IP l'aimantation est saturée pour 8 kOe (Bi1) et 10 kOe (AC).

Nous avons également mesuré la courbe d'hystérésis des échantillons en fonction de l'angle que fait le champ magnétique avec le réseau. Nous avons ainsi pu établir le comportement du champ coercitif et de l'aimantation rémanente en fonction de l'angle (courbes complètes seulement pour AA et AC). Les résultats de ces mesures sont présentés à la [Figure 4.7](#).

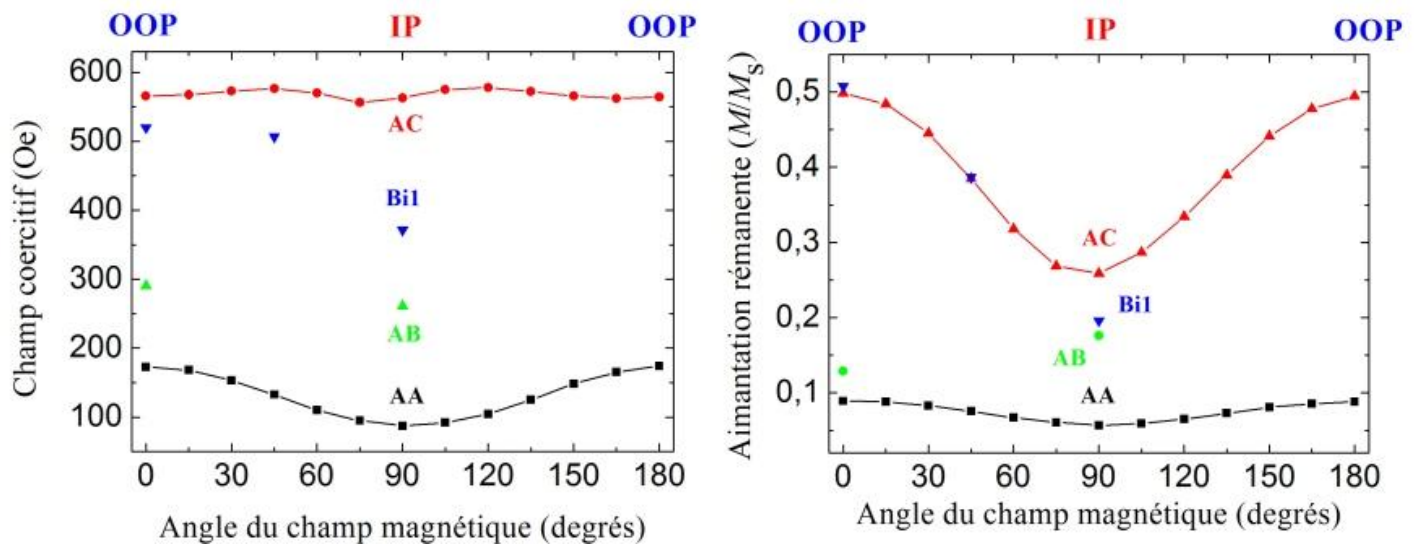


Figure 4.7 : (Gauche) Champ coercitif en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux bicouches.  $0^\circ = \text{OOP}$  et  $90^\circ = \text{IP}$ . (Droite) Aimantation rémanente en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux bicouches.  $0^\circ = \text{OOP}$  et  $90^\circ = \text{IP}$ . (AA :  $5/5 \times 368$ ) ; (AB :  $10/10 \times 500$ ) ; (AC :  $50/10 \times 500$ ) ; (Bi1 :  $50/50 \times 154$ ).  $B = 1 \text{ T} = \mu_0 \cdot 10 \text{ kOe}$ ,  $2a = 45 \text{ nm}$ ,  $D = 110 \text{ nm}$ . ( $4\pi 10^{-3} \text{ Oe} = 1 \text{ A/m}$ )

On observe dans les quatre cas que le champ coercitif ne varie que très peu entre les configurations OOP et IP, avec Bi1 enregistrant la plus forte variation. Le champ coercitif est dans tous les cas minimum lorsque le champ magnétique est dans le plan, et maximum lorsque qu'il est selon l'axe des nanofils. Il est à noter que la dépendance angulaire du champ coercitif peut servir à analyser le mécanisme de renversement de l'aimantation (rotation cohérente, *buckling*, *curling*, etc.). On pourra consulter par exemple (Sun et al., 2005) pour une présentation de quelques modèles sur ces mécanismes dans les nanofils.

Le comportement angulaire de la rémanence des échantillons (AC, Bi1) est quant à lui caractérisé par une très forte diminution de  $M_r$  lorsque le champ magnétique passe de OOP à IP. Cela s'explique notamment par l'épaisse couche de CoFeB qui favorise l'aimantation dans la direction OOP de par sa forme plus allongée. Les deux autres échantillons (AA, AB) ne voient leur rémanence varier que de très peu en valeur absolue.

Le Tableau 4.1 résume les résultats de mesures magnétostatiques sur les nanofils bicouches. Nous avons aussi inclus les valeurs de champ effectif déterminées expérimentalement par VSM. Nous avons comparé ces valeurs à celles prédites par le modèle d'anisotropie effective développé au chapitre 3 (calcul numérique et équations analytiques). Comme nous l'avons mentionné au chapitre 2, nous n'avons pas été en mesure de déterminer l'épaisseur précise des différentes couches de CoFeB et de Cu. Nous avons donc préféré présenter des prédictions de  $H_{\text{eff}}$  correspondant à une fourchette d'épaisseurs de  $h_m$  et  $h_{nm}$  situées à 20% en dessous des valeurs ciblées. Nous considérons seulement la fourchette inférieure puisque l'électrodéposition ne devrait pas en principe produire un rendement supérieur à 100%.

Tableau 4.1 : Synthèse des résultats de magnétométrie statique sur les réseaux de nanofils bicouches.  $H_{\text{eff}}$  par VSM est obtenu avec les pentes à  $M = 0$ . La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ  $400 \times 400$  nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées.

Échantillon	Géométrie	$H_c$ (Oe)		$M_r$ ( $M/M_s$ )		$H_{\text{eff}}$ (Oe), ( $4\pi 10^{-3}$ Oe = 1 A/m)		
		IP	OOP	IP	OOP	VSM	Calculs numériques	Éqs. Analytiques (3.55)
CoFeB/Cu-	$h_m/h_{nm}(\text{nm}) \times N$							
AA	$5/5 \times 368$	115	200	0,08	0,12	-250	[-2400 -900]	[5315 9580]
AB	$10/10 \times 500$	245	315	0,17	0,13	-760	[-2450 0]	[-4440 -1768]
AC	$50/10 \times 500$	600	535	0,26	0,51	900	[3900 4700]	-
Bi1	$50/50 \times 154$	370	520	0,19	0,51	670	[525 1800]	-

Rappelons que pour  $H_{\text{eff}} < 0$  la direction facile est dans le plan (perpendiculaire aux nanofils) alors que pour  $H_{\text{eff}} > 0$  la direction facile est selon l'axe des nanofils. On observe ici que le modèle prédit le bon signe du champ effectif mais qu'il surestime grandement sa valeur absolue dans tous les cas. Sur les quatre échantillons, seuls AB et Bi1 ont un champ effectif expérimental inclus dans la zone d'incertitude de 20% que nous avons définie pour le modèle. L'écart le plus important entre le modèle et le champ effectif déterminé par VSM est pour une couche épaisse de CoFeB (50 nm) et un petit espacement de Cu (10 nm).

Les équations analytiques quant à elles donnent des prédictions très différentes des mesures. Cela n'est pas surprenant puisqu'elles supposent que l'on peut traiter les couches (autre que la couche jumelle) comme des macrospins, ce qui n'est évidemment plus le cas pour des bicouches de quelques nanomètres d'épaisseurs. De plus, comme on l'a vu auparavant, les équations analytiques ne sont pas valides pour des rapports  $c = h_{nm1}/2a$  plus grands que 1, ce qui est le cas pour les échantillons AC/Bi1. Nous n'avons donc pu calculer la valeur de champ effectif par ces équations.

Plusieurs aspects peuvent expliquer le désaccord entre le modèle (calculs numériques) et le champ effectif déterminé expérimentalement. D'une part, il est très probable que la valeur de  $M_s = 1200 \text{ emu/cm}^3$  soit en fait plus petite dans la réalité. Nous savons que durant l'électrodéposition les atomes de Cu peuvent diffuser dans les couches de CoFeB et venir ainsi réduire la valeur  $M_s$ . Il est également possible que la stœchiométrie du  $\text{Co}_{94}\text{Fe}_5\text{B}_1$ , basée sur des mesures sur couches minces et microfils, puisse être différente pour des couches nanométriques. Dans ce cas également la valeur de  $M_s$  pourrait être différente. Une autre source d'écart provient de l'erreur sur l'épaisseur des couches.

Ces mesures ont permis de confirmer du moins une limite de validité des équations analytiques (3.55). En effet, ces équations ne s'appliquent plus si l'épaisseur de la couche d'espacement entre les tricouches compromet l'hypothèse selon laquelle on peut traiter les couches (autre que la couche jumelle) comme des macrospins. Dans ce cas, le modèle numérique

reflète mieux la réalité en intégrant les contributions dipolaires infinitésimales sur chacune des couches.

### 4.1.3 Propriétés magnétostatiques des nanofils tricouches

Nous présentons maintenant les résultats de magnétométrie statique des nanofils tricouches, dont l'unité périodique est de type  $\text{CoFeB}(\mathbf{h}_m)/\text{Cu}(\mathbf{h}_{nm1})/\text{CoFeB}(\mathbf{h}_m)/\text{Cu}(\mathbf{h}_{nm2})$ . Les dimensions ciblées des échantillons étudiés sont présentées à la [Figure 4.8](#).

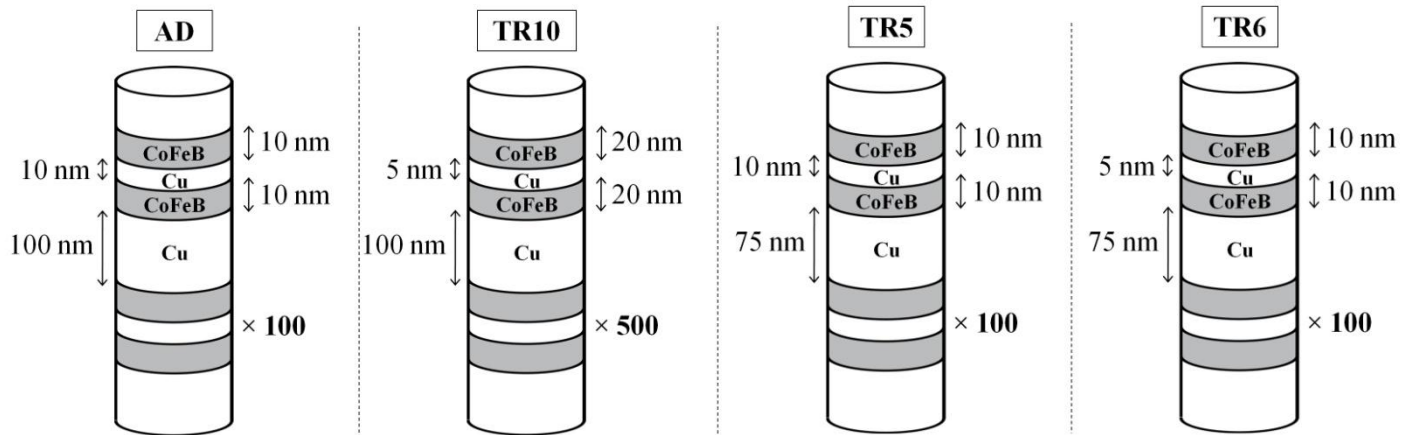


Figure 4.8 : Dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils tricouches obtenus expérimentalement.

La [Figure 4.9](#) présente les courbes d'hystérésis mesurées par VSM sur quatre échantillons de nanofils tricouche avec des géométries différentes.

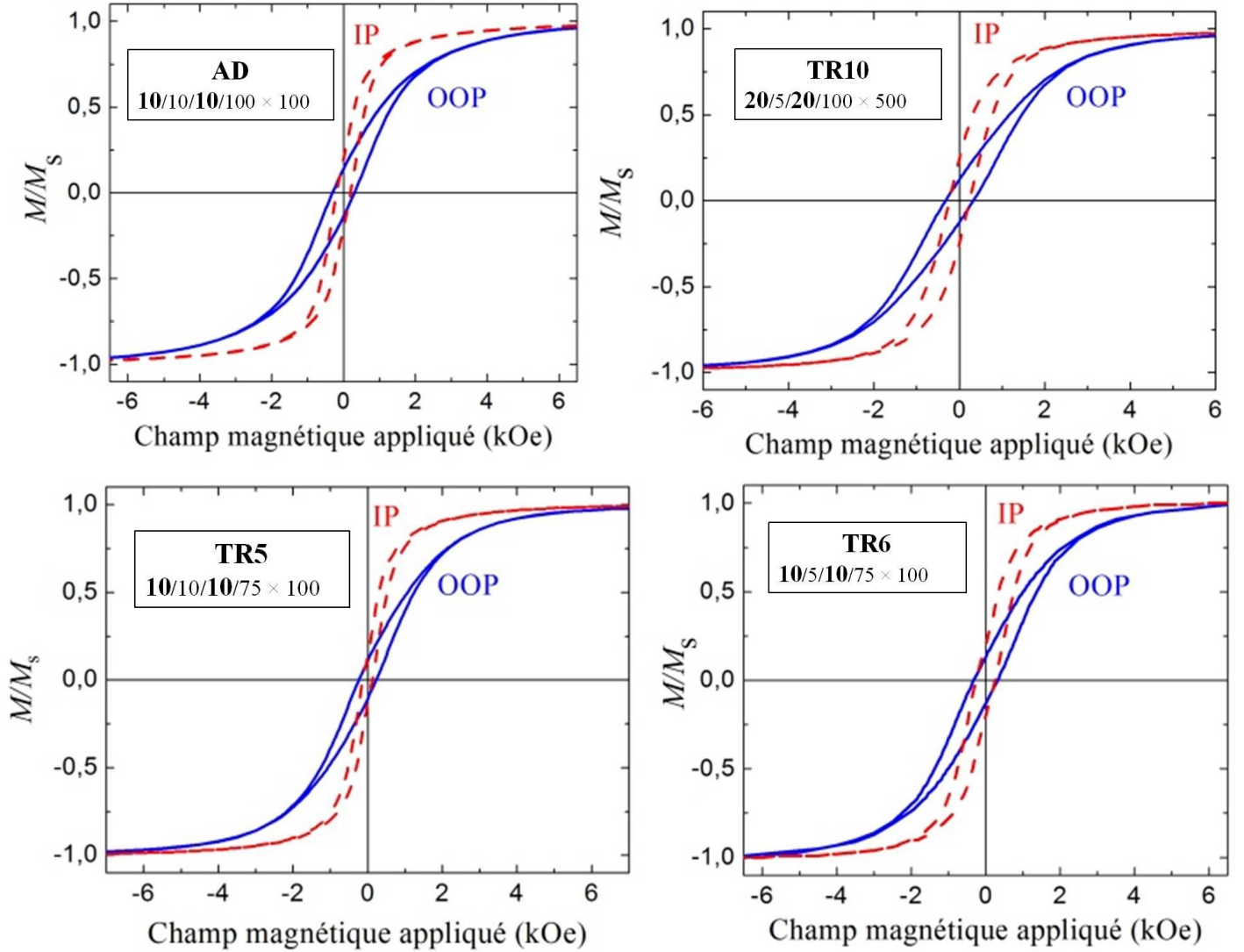


Figure 4.9 : Aimantation normalisée en fonction du champ magnétique (1 kOe = 0,1 T) de quatre réseaux de nanofils tricouche mesurées par VSM (directions du champ IP et OOP). Les épaisseurs ciblées des couches de CoFeB et de Cu sont indiquées en encadré pour chaque courbe avec comme nomenclature la suivante:  $\mathbf{h_m}/h_{nm1}/\mathbf{h_m}/h_{nm2} = \mathbf{CoFeB}(h_m)/\text{Cu}(h_{nm1})/\mathbf{CoFeB}(h_m)/\text{Cu}(h_{nm2})$ . L'aimantation est normalisée par la valeur d'aimantation au champ maximum (2T = 20 kOe).  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm.

On remarque que la configuration tricouche permet effectivement d'obtenir plus facilement des réseaux d'anisotropie effective caractérisée par un plan facile (IP). Plus particulièrement pour l'échantillon TR10, une géométrie bicouche équivalente de la forme

[CoFeB(20)/Cu(5)  $\times$  500] aurait présenté un axe facile OOP en tenant compte des résultats présentées pour les bicouches. La séparation des tricouches par une épaisse couche de Cu permet donc de réduire considérablement l'importance des interactions intra-fils qui ont tendance à favoriser l'anisotropie OOP. Ce comportement est bien décrit par l'Éq. (3.55) où l'on voit bien que le terme dépendant de cette séparation des tricouches,  $f$ , décroît lorsque  $h_{nm2}$  augmente et cela a pour effet de diminuer le champ effectif. La Figure 4.10 présente la dépendance angulaire de la coercivité ainsi que le comportement angulaire de la rémanence.

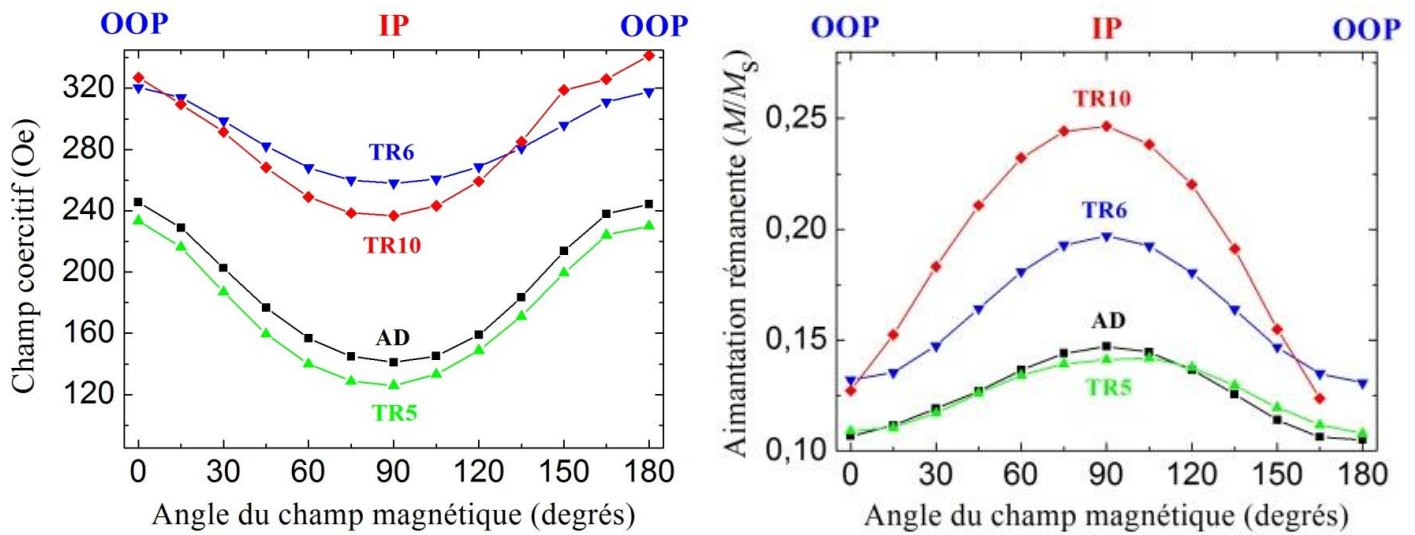


Figure 4.10 : (Gauche) Champ coercitif en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux bicouches. [0° = OOP et 90° = IP. (Droite) Aimantation rémanente en fonction de l'angle du champ magnétique pour les réseaux tricouches. 0° = OOP et 90° = IP. (AD : **10/10/10**/100  $\times$  100) ; (TR5 : **10/10/10**/75  $\times$  100) ; (TR6 : **10/5/10**/75  $\times$  100) ; (TR10 : **20/5/20**/100  $\times$  500).  $B = 1 \text{ T} = \mu_0 \cdot 10 \text{ kOe}$ ,  $2a = 45 \text{ nm}$ ,  $D = 110 \text{ nm}$ . ( $4\pi 10^{-3} \text{ Oe} = 1 \text{ A/m}$ )

On observe une dépendance en fonction de l'angle en forme de cloche pour la coercivité et la rémanence. Dans le cas de la coercivité, le maximum de  $H_c$  se situe dans la configuration OOP alors que le minimum est dans la configuration IP. C'est tout le contraire pour la rémanence, où le maximum de  $M_r$  est dans la configuration IP. On remarque également que le comportement de la coercivité et de la rémanence sont très sensibles aux interactions dipolaires et à l'anisotropie de

forme. En effet, en variant de quelques nanomètres les épaisseurs de CoFeB et de Cu, on observe de variations importantes des propriétés magnétiques. Le Tableau 4.2 résume les résultats de mesures magnétostatiques sur les nanofils tricouches.

Tableau 4.2 : Synthèse des résultats de magnétométrie statique sur les réseaux de nanofils tricouches.  $H_{\text{eff}}$  par VSM est obtenu avec les pentes à  $M = 0$ . La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ  $400 \times 400$  nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées.

Échantillon	Géométrie $\mathbf{h_{m1}/h_{nm1}/h_{m2}/h_{nm2}}$ (nm) $\times N$	$H_c$ (Oe)		$M_r$ ( $M/M_s$ )		$H_{\text{eff}}$ (Oe), ( $4\pi 10^{-3}$ Oe = 1 A/m)		
		IP	OOP	IP	OOP	VSM	Calculs numériques	Éqs. Analytiques (3.55)
AD	<b>10/10/10</b> /100 $\times$ 100	200	280	0,2	0,14	-1300	[-6620 -5210]	[-8140 -6380]
TR5	<b>10/10/10</b> /75 $\times$ 100	120	215	0,14	0,11	-1300	[-6590 -5180]	[-8190 -6450]
TR6	<b>10/5/10</b> /75 $\times$ 100	240	315	0,2	0,13	-1250	[-5920 -4330]	[-7800 -6070]
TR10	<b>20/5/20</b> /100 $\times$ 500	235	325	0,24	0,12	-1600	[-1670 -320]	[-1400 1680]

On constate encore que le modèle d'anisotropie effective prédit le bon signe du champ effectif (dans le plan) mais qu'il surestime fortement sa valeur absolue dans tous les cas sauf celui du TR10. On observe aussi une contradiction entre le modèle et la mesure où l'échantillon TR10 devrait en principe avoir un champ effectif favorisant davantage la direction OOP que TR6 de par ses dimensions. Toutefois, la mesure VSM montre un champ effectif plus faible pour TR10. Enfin, la faible différence de dimensions entre AD et TR5 se traduit par un champ effectif similaire à la fois pour le modèle et pour la mesure VSM. Nous avons vu au chapitre 3 que l'effet de la couche de Cu séparant les tricouches était négligeable au-delà de 50 nm, ce qui est ici

confirmé expérimentalement. En appliquant l'Éq. (3.55), on constate que le terme fortement dominant de l'anisotropie pour tous ces échantillons est l'anisotropie de forme. Cela suggère donc que notre modèle ne prend pas bien en compte le calcul de l'anisotropie de forme, que ce soit par l'expression pour un cylindre ou une ellipsoïde oblate.

## 4.2 Résonance ferromagnétique

Le comportement dynamique de l'aimantation en hyperfréquences dans les réseaux de nanofils magnétiques multicouches est, rappelons-le, très important à comprendre pour éventuellement les implanter dans des dispositifs micro-ondes ou bien pour l'étude de la réponse magnéto-diélectrique. Nous avons déjà expliqué le concept de résonance ferromagnétique dans les nanofils multicouches. Nous donnons ici des détails sur l'aspect expérimental de la mesure qui est effectuée à fréquence fixe en balayant le champ magnétique. La Figure 4.11 présente le montage utilisé pour les mesures de résonance ferromagnétique.

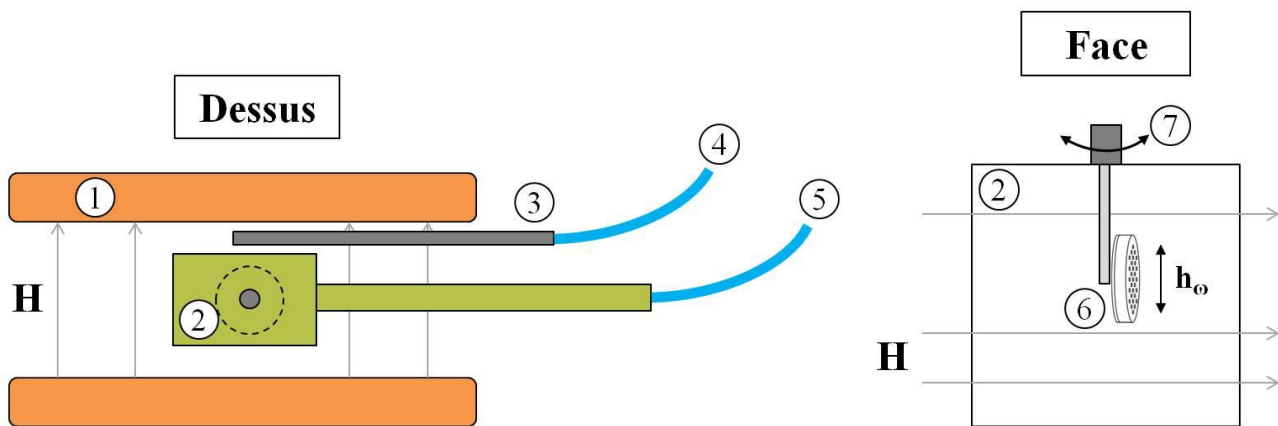


Figure 4.11 : Schéma du montage de résonance ferromagnétique. L'électroaimant (1) produit un champ magnétique homogène entre ses pôles. La cavité résonante cylindrique (sur la figure, l'axe du cylindre sort de la page) (2) contient l'échantillon de nanofils et est reliée à un guide d'onde. La sonde à effet Hall (3) permet de lire le champ magnétique et est reliée à un gaussmètre (4). Les ondes électromagnétiques de fréquence  $\omega$  sont générées par l'analyseur de réseau vectoriel (5) renvoyées à celui-ci après interactions avec l'échantillon (6). Un moteur (7) permet d'effectuer automatiquement la rotation de l'échantillon selon l'axe du porte-échantillon.

L'analyse de réseau vectoriel (VNA) est un Agilent Technologies N5230A (10MHz à 40GHz) et le gaussmètre est un Bell 9900 Series. L'électroaimant peut produire un champ magnétique ( $B_0 = \mu_0 H_0$ ) allant de 0 à 2T (0 à 20 kOe). Ce montage expérimental nous permet de mesurer le coefficient de réflexion de la cavité en fonction du champ magnétique statique, de sa direction par rapport à l'échantillon, et ce pour plusieurs fréquences correspondant aux fréquences de résonance de cavités résonantes cylindriques de mode  $TE_{011}$  17, 24, 31, et 38 GHz. La configuration des champs électromagnétiques dans ces cavités fait en sorte que le champ électrique est minimal au centre de la cavité, alors que le champ magnétique y est maximal; nous avons donc positionné l'échantillon au centre de la cavité.

L'acquisition des données et le contrôle des différents appareils furent effectués automatiquement à l'aide d'un programme Labview développé par Christian Lacroix (étudiant au doctorat) et Alexandre Ouimet (étudiant à la maîtrise). La mesure par cavité résonante est particulièrement adaptée aux échantillons à faible signal magnétique tels que les nanofils multicouches. Toutefois, l'échantillon doit être suffisamment petit pour demeurer dans le régime des faibles perturbations et pour que le champ magnétique alternatif soit uniforme sur l'ensemble de l'échantillon.

#### 4.2.1 Détermination expérimentale du champ effectif par FMR

Afin d'extraire des données quantitatives de l'anisotropie, il est possible de déterminer le champ effectif du réseau par mesure de résonance ferromagnétique. Pour ce faire, nous reprenons les Éqs. (3.51) et (3.54) modélisant la résonance ferromagnétique dans les nanofils multicouches à l'aide d'une anisotropie effective uniaxiale perpendiculaire à la couche. Les inconnus sont, a priori, le champ effectif le facteur gyromagnétique et l'angle d'équilibre  $\theta_0$ . Partant de (3.54), nous l'écrivons comme une équation quadratique de la forme  $0 = aH_0 + bH_0^2 + c$ :

$$0 = H_0^2 \cos^2(\theta_0 - \theta_H) + H_0 H_{\text{eff}} \cos(\theta_0 - \theta_H) (\cos(2\theta_0) + \cos^2(\theta_0)) + H_{\text{eff}}^2 \cos(2\theta_0) \cos^2(\theta_0) - \left( \frac{\omega_0}{|\gamma| \mu_0} \right)^2 \quad (4.2)$$

Supposant  $\theta_0$  connu, les racines de cette équation nous donnent le champ de résonance  $H_0$  en fonction de l'angle  $\theta_H$  du champ magnétique par rapport aux nanofils et la valeur du facteur gyromagnétique (lié au facteur  $g$ ). Cette valeur initiale de  $H_{\text{eff}}$  peut être utilisée de façon récursive entre (3.51) et (3.54) pour déterminer  $\theta_0$  et  $H_{\text{eff}}$ . En pratique, nous verrons que les champs de résonance impliqués sont plus élevés que les champs de saturation déterminés par VSM et nous supposons donc que  $\theta_0 = \theta_H$ . Il suffit donc de trouver les meilleurs paramètres expérimentaux, ici  $|\gamma|$  et  $H_{\text{eff}}$ , qui permettent de reproduire l'Éq. (4.2). Pour ce faire, nous mesurons par résonance ferromagnétique le champ de résonance  $H_0$  en fonction de l'angle du champ magnétique  $\theta_H$  et nous minimisons l'écart quadratique moyen entre les solutions expérimentales et théoriques. Il est important de souligner que cette équation n'est valide que si le champ magnétique sature complètement les nanofils, appuyant ainsi l'hypothèse de moments magnétiques rigides en rotation. Cela nous permettra d'établir que  $\theta_0 \cong \theta_H$  dans l'Éq. (4.2), notamment pour les grandes fréquences de résonance qui demande des champs de résonance plus élevés. Le champ effectif déterminé par cette technique pourra être comparé aux valeurs du modèle, que ce soit par les équations exactes ou approximatives.

#### 4.2.2 Résonance ferromagnétique des nanofils bicouches

Nous présentons dans cette section les résultats des mesures de résonance ferromagnétique effectuées sur les échantillons de nanofils bicouches. Pour chacun des échantillons, nous montrons les mesures d'absorption en fonction du champ pour les deux directions principales (IP et OOP), ainsi que les mesures de champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique. Nous présentons également la courbe minimisant l'écart quadratique entre les données expérimentales et l'Éq. (4.2), ce qui nous permettra de déterminer  $H_{\text{eff}}$ . Nous montrons enfin l'écart des champs de résonance obtenus

expérimentalement avec ceux du modèle, ce qui nous donnera une indication sur les contributions manquantes à l'anisotropie. Les résultats sont présentés dans les figures suivantes.

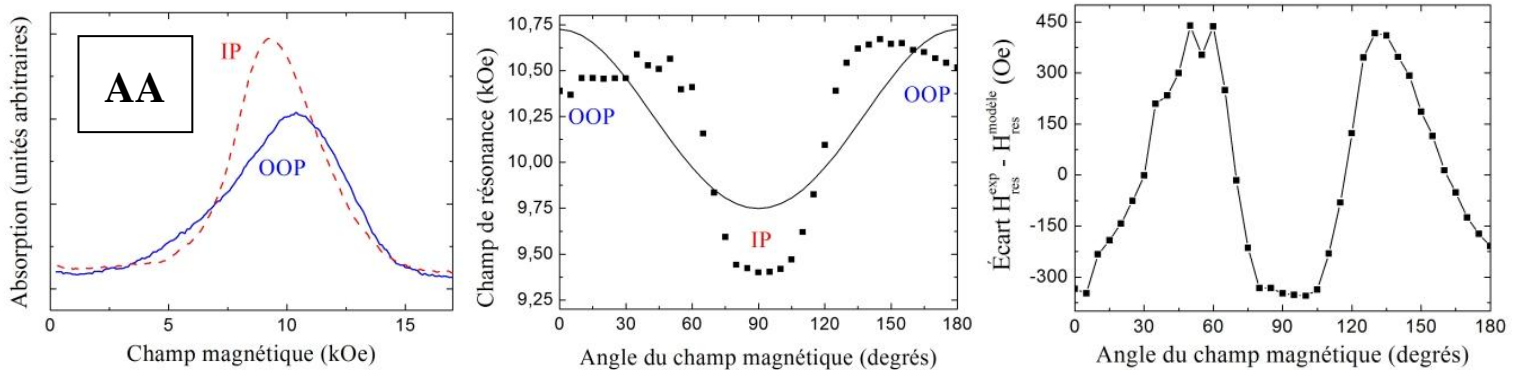


Figure 4.12 : Mesures FMR sur l'échantillon AA ( $5/5 \times 368$ ) à 31 GHz. (Haut) Absorption électromagnétique en fonction du champ magnétique pour les deux configurations IP/OOP. (Gauche) Champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué. Les carrés représentent les mesures expérimentales et la courbe continue obtenue par l'Éq. (4.2). (Droite) Écart entre mesures expérimentales et le modèle.  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm

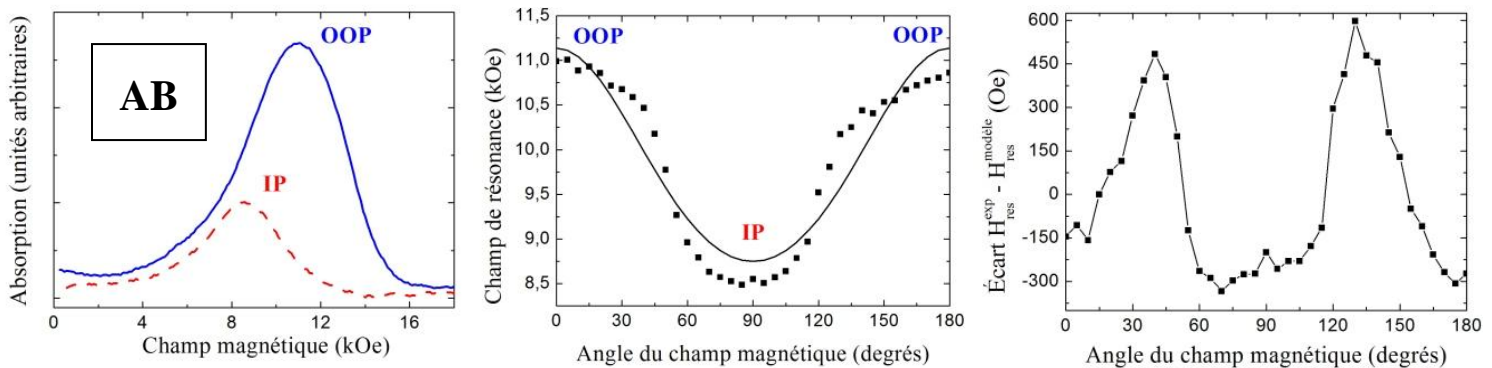


Figure 4.13 : Mesures FMR sur l'échantillon AB ( $10/10 \times 500$ ) à 31 GHz.

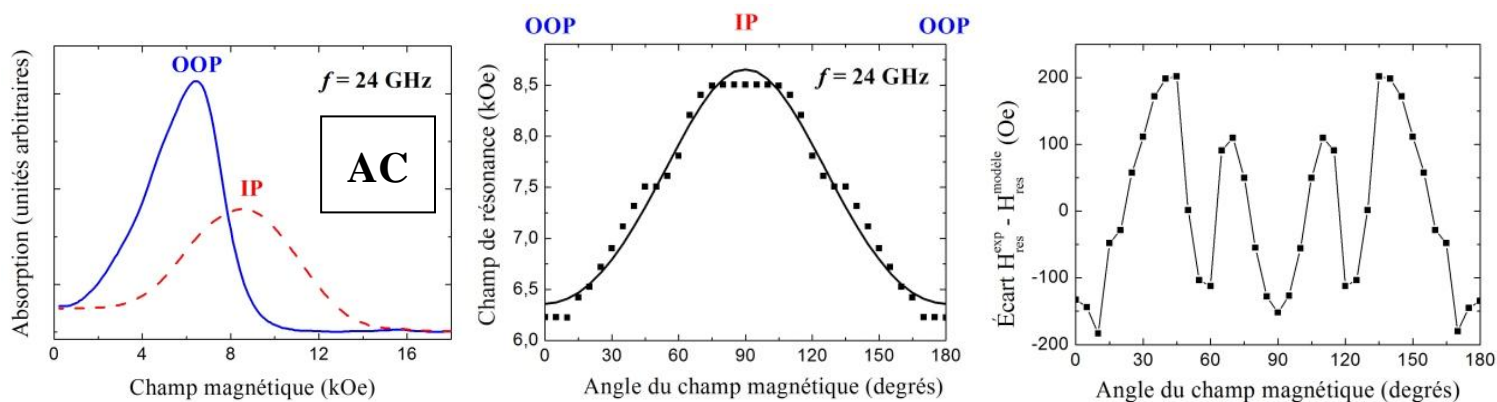


Figure 4.14 : Mesures FMR sur l'échantillon AC ( $50/10 \times 500$ ) à 24 GHz.

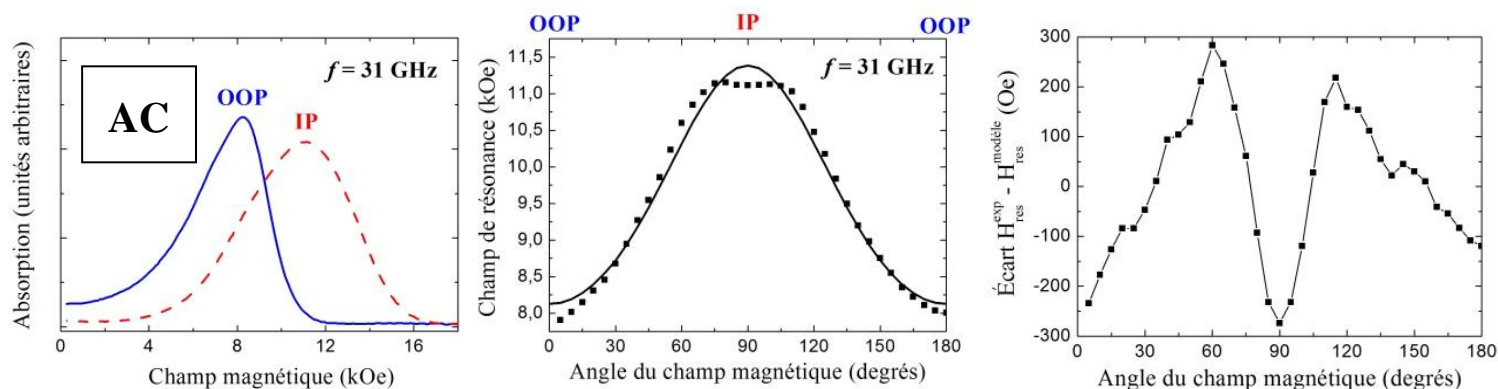


Figure 4.15 : Mesures FMR sur l'échantillon AC ( $50/10 \times 500$ ) à 31 GHz.

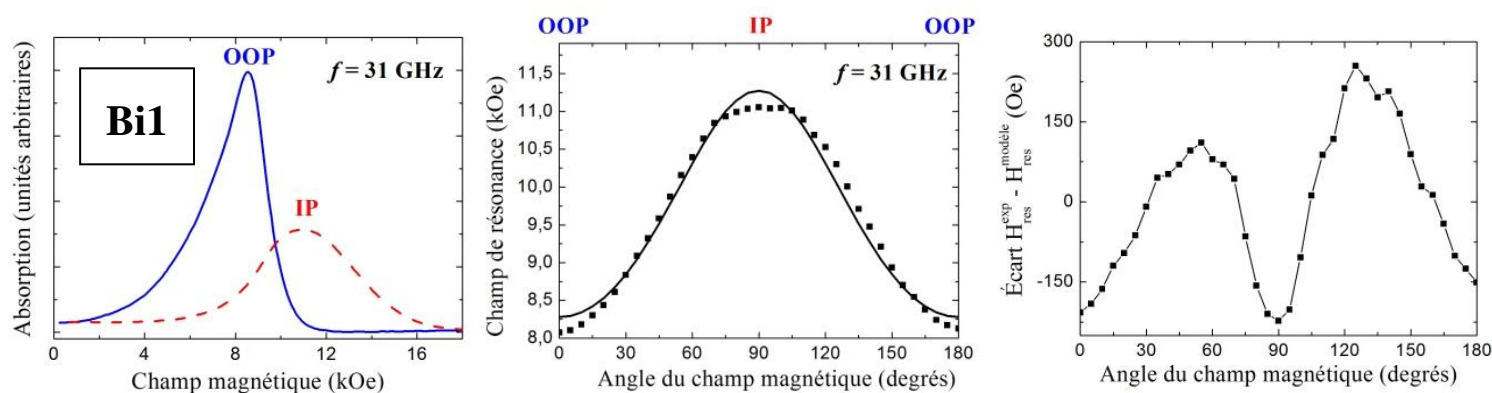


Figure 4.16 : Mesures FMR sur l'échantillon Bi1 ( $50/50 \times 154$ ) à 31 GHz.

Le premier constat que l'on peut effectuer est que les approximations impliquées dans le modèle de résonance ferromagnétique développée dans l'Éq. (4.2) ne semble pas s'appliquer aux échantillons AA et AB. Ces deux échantillons sont caractérisés par une anisotropie de plan facile (IP) et des couches de CoFeB très minces (5 ou 10 nm). Le champ de résonance est l'objet d'une baisse drastique autour de  $\theta = 65^\circ$  pour AA et  $\theta = 50^\circ$  pour AB. Le modèle colle beaucoup mieux aux courbes de résonance dans le cas des échantillons AC et Bi1, qui sont caractérisées par un axe facile hors-plan (OOP) et d'épaisses couches de CoFeB (50 nm). On note tout de même un plateau pour les champs de résonance dans une plage autour de 90 deg. (IP).

On remarque également une forme particulière des courbes de résonance à bas champ; celles-ci ne sont pas symétriques à gauche de la résonance. Cela suggère une distribution de fréquences de résonance à bas champ correspondant à la résonance de couches ferromagnétiques d'épaisseurs variées.

Les courbes de l'écart des champs de résonance ( $H_{\text{res}}^{\text{exp}} - H_{\text{res}}^{\text{modèle}}$ ) en fonction de l'angle du champ magnétique permettent de mettre en évidence la forme des contributions non prises en compte par le modèle. On observe que cet écart prend une forme de fonctions sinusoïdales avec des minima en  $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$  et des maxima en  $\theta = 45^\circ, 135^\circ$  ou  $\theta = 60^\circ, 120^\circ$  selon l'échantillon. L'échantillon AC de la [Figure 4.14](#) montre toutefois une plus petite périodicité avec des minima en  $\theta = 0^\circ, 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ, 180^\circ$  et des maxima en  $\theta = 0^\circ, 45^\circ, 75^\circ, 105^\circ, 135^\circ$ . Il est intéressant de noter que la forme de cette contribution supplémentaire change de périodicité en passant d'une fréquence de résonance de 24 à 31 GHz. Ces formes sinusoïdales seraient caractéristiques de contributions d'ordres supérieures à l'anisotropie. La nature de ces contributions devrait être traitée dans de futurs travaux. Tous ces résultats sont résumés dans le [Tableau 4.3](#).

Tableau 4.3 : Synthèse des résultats de résonance ferromagnétiques sur les réseaux de nanofils bicouches. Le champ effectif  $H_{\text{eff}}$  et le facteur  $g$  sont les deux paramètres expérimentaux déterminés à l'aide de l'Éq. (4.2). La taille du réseau utilisée dans le modèle est de 200 (environ  $400 \times 400$  nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées.

Échantillon	Géométrie	Fréquences	$H_{\text{eff}}$ (Oe), ( $4\pi 10^{-3}$ Oe = 1 A/m)		
CoFeB/Cu-	$h_m/h_{nm} \text{ (nm)} \times N$	GHz	FMR	Calculs numériques	Facteur $g$
AA	$5/5 \times 368$	31	-655	[-2400 -900]	2,19
AB	$10/10 \times 500$	31	-1610	[-2450 0]	2,31
AC	$50/10 \times 500$	24 ; 31	1510; 2140	[3900 4700]	2,18 ; 2,15
Bi1	$50/50 \times 154$	31	1970	[525 1800]	2,15

On remarque ici que les valeurs de champ effectif déterminées par FMR se rapprochent beaucoup plus des valeurs du modèle que celle déterminées par VSM. Alors que le modèle surestimait grandement le champ effectif par rapport à la valeur du VSM, ici l'écart est plus modéré. Néanmoins, l'écart est relativement important dans les couches plus minces (5 nm), ce qui peut être potentiellement expliqué par une contribution importante provenant d'anisotropie de surface. Il est également possible que cet écart soit expliqué par la présence d'anisotropie cristalline. L'étude des formes périodiques observées plus haut permettra de mieux comprendre la nature de cette contribution manquante.

### 4.2.3 Résonance ferromagnétique des nanofils tricouches

Nous présentons maintenant les résultats des mesures de résonance ferromagnétique effectuées sur les échantillons de nanofils tricouches. Les figures suivantes présentent l'absorption électromagnétique des échantillons en fonction du champ magnétique ainsi que la dépendance angulaire du champ de résonance. Nous présentons également, comme dans le cas des bicouches, l'écart des champs de résonance déterminés expérimentalement et par le modèle.

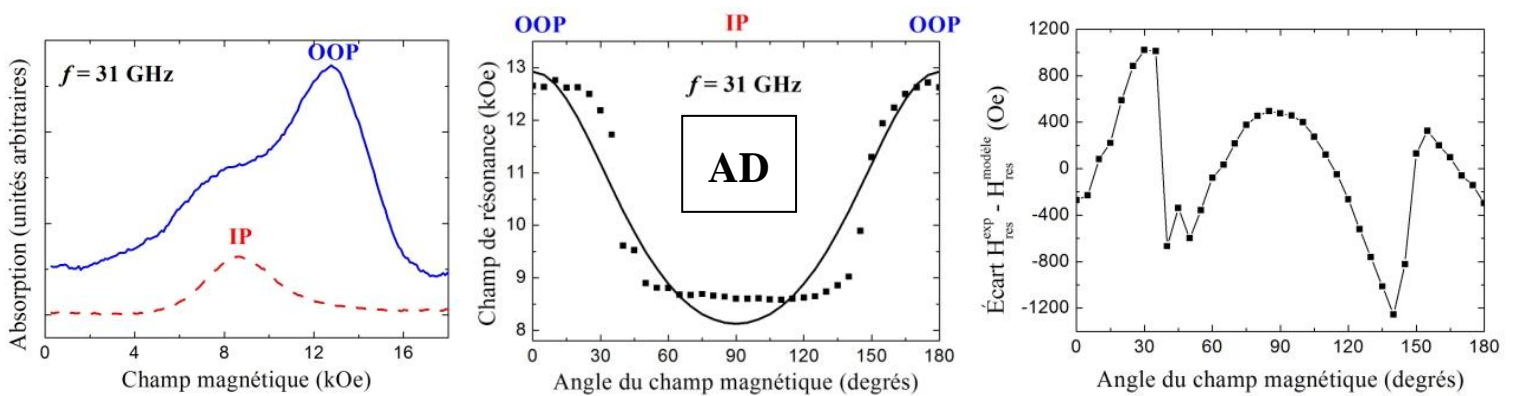


Figure 4.17 : Mesures FMR sur l'échantillon AD ( $10/10/10/100 \times 100$ ) à 31 GHz. (Gauche) Champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué. Les carrés représentent les mesures expérimentales et la courbe continue obtenue par l'Éq. (4.2). (Droite) Écart entre mesures expérimentales et le modèle.  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm

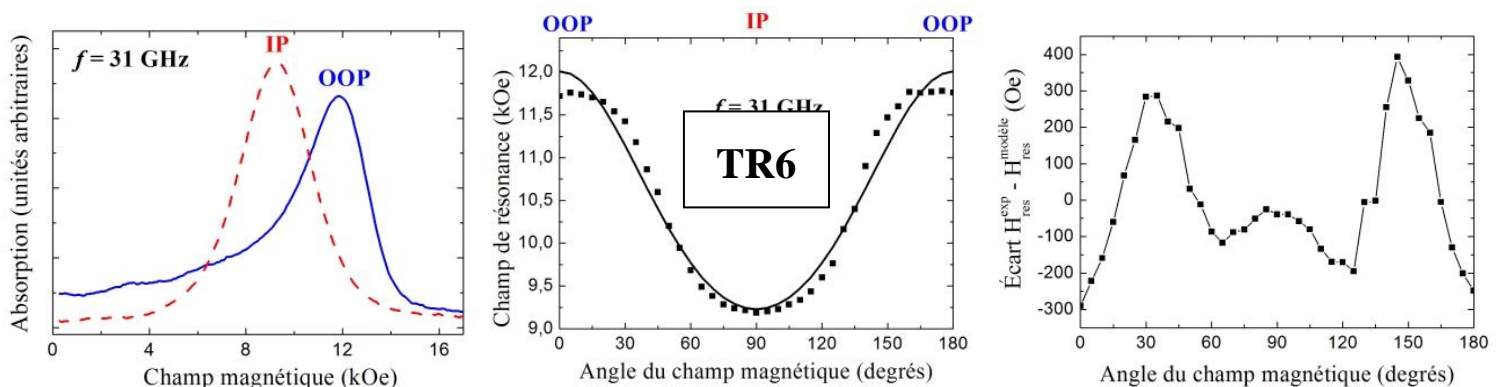


Figure 4.18 : Mesures FMR sur l'échantillon TR6 ( $10/5/10/75 \times 100$ ) à 31 GHz.

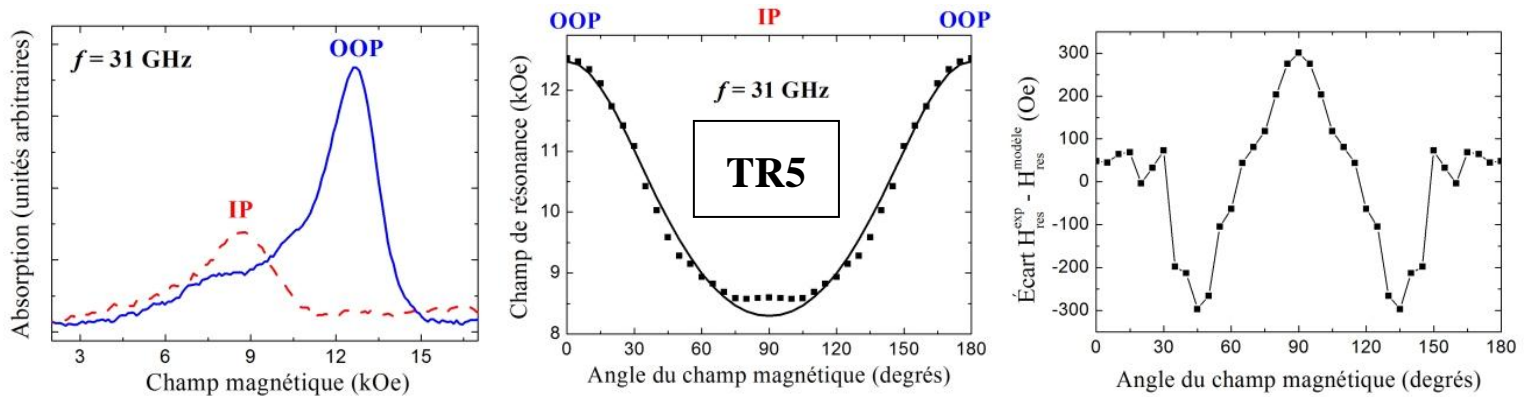


Figure 4.19 : Mesures FMR sur l'échantillon TR5 ( $10/10/10/75 \times 100$ ) à 31 GHz.

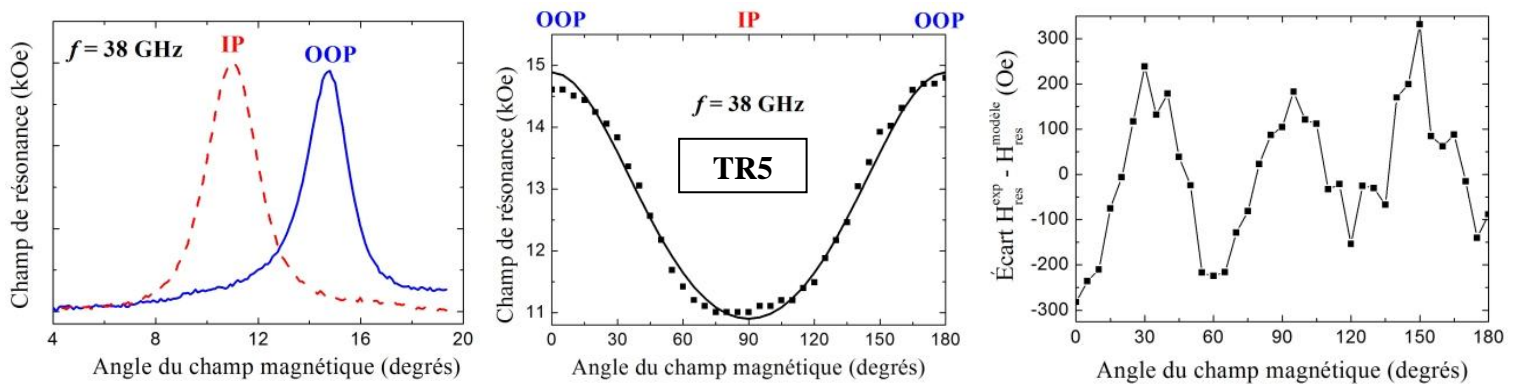


Figure 4.20 : Mesures FMR sur l'échantillon TR5 ( $10/10/10/75 \times 100$ ) à 38 GHz.

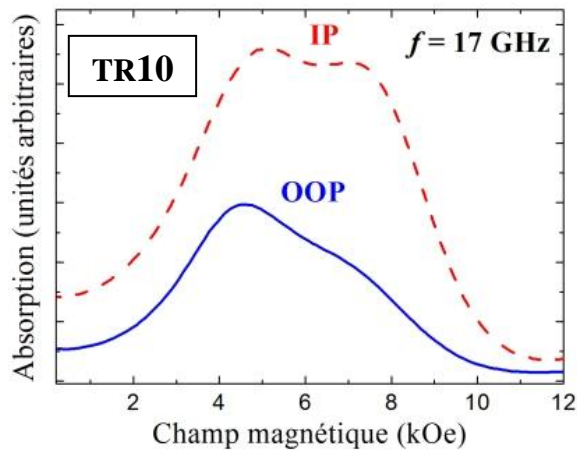


Figure 4.21 : Mesures FMR sur l'échantillon TR10 ( $20/5/20/100 \times 500$ ) à 17 GHz. Absorption électromagnétique en fonction du champ magnétique pour les deux configurations IP/OOP.  $2a = 45$  nm,  $D = 110$  nm.

On remarque que le modèle de résonance ferromagnétique colle un peu plus ici aux courbes de résonance que dans le cas des bicouches. La forme de cloche inversée pour tous les échantillons reflète l'anisotropie effective caractérisée par un plan facile (IP). Un phénomène curieux est observé pour l'échantillon AD ([Figure 4.17](#)), où un deuxième pic de résonance apparaît clairement lorsque le champ magnétique est OOP. Cette double résonance disparaît complètement en champ IP. Il semblerait qu'en passant de OOP à IP, le pic autour de 13 kOe disparaisse brusquement à  $\theta = 40^\circ$  pour laisser place à un pic de résonance à champ de résonance constant (8,5 kOe) de  $\theta = 45^\circ$  à  $\theta = 135^\circ$ . On observe le même phénomène, quoique dans une moindre mesure, sur l'échantillon TR5 ([Figure 4.19](#) et [Figure 4.20](#)) à 31 GHz, mais non à 38 GHz.

. A priori, cette double résonance est une caractéristique observée dans nos échantillons seulement pour la configuration tricouche. Cela suggère que l'interaction dipolaire entre les deux couches jumelles permet d'exciter deux modes de résonance. De plus, on observe que ces effets double-pics semblent clairement plus apparents dans les expériences à basses fréquences, donc à plus faibles champs. Plus particulièrement, pour TR10 ([Figure 4.21](#)) le réseau n'est pas totalement saturé pour ces champs magnétiques. Il semble donc plus probable d'exciter deux modes de résonance lorsque l'aimantation n'est plus uniforme. Des travaux futurs devraient aborder la déconvolution des deux pics de résonance afin d'en déterminer le comportement angulaire.

Les courbes de l'écart des champs de résonance ( $H_{\text{res}}^{\text{exp}} - H_{\text{res}}^{\text{modèle}}$ ) en fonction de l'angle du champ magnétique permettent encore de mettre en évidence la forme des contributions non prises en compte par le modèle. Il est pour l'instant difficile d'interpréter ces courbes sans une étude plus approfondie des contributions pouvant prendre ces formes périodiques.

Les résultats sur de résonance ferromagnétique sur les nanofils tricouches sont résumés dans le

Tableau 4.4\_. Comme dans le cas des bicouches, le champ effectif déterminé par FMR se rapproche davantage des valeurs du modèle que ce qui est déterminé par VSM. Néanmoins, le modèle surestime toujours le champ effectif en valeur absolue, ce qui laisse porter à croire qu'une autre contribution à l'anisotropie serait pertinente à considérer.

Tableau 4.4 : Synthèse des résultats de résonance ferromagnétiques sur les réseaux de nanofils tricouches. Le champ effectif  $H_{\text{eff}}$  et le facteur  $g$  sont les deux paramètres expérimentaux déterminés à l'aide de l'Éq. (4.2). La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ  $400 \times 400$  nanofils). Les valeurs du modèle représentent les champs effectifs extrema dans une fourchette inférieure de 20% des épaisseurs des couches par rapport aux dimensions ciblées.

Échantillon	Géométrie	Fréquences	$H_{\text{eff}}$ (Oe), ( $4\pi 10^{-3}$ Oe = 1 A/m)		Facteur $g$
CoFeB/Cu-	$\mathbf{h_{m1}/h_{nm1} / h_{m2}/h_{nm2}}$ (nm) $\times N$	GHz	FMR	Calculs numériques	
AD	<b>10/10/10</b> /100 $\times$ 100	31	-3290	[-6620 -5210]	2,29
TR5	<b>10/10/10</b> /75 $\times$ 100	31 ; 38	-2855; -2710	[-6590 -5180]	2,29 ; 2,23
TR6	<b>10/5/10</b> /75 $\times$ 100	31	-1885	[-5920 -4330]	2,18
TR10	<b>20/5/20</b> /100 $\times$ 500	17	-	[-1670 -320]	-

On remarque que la variation du champ effectif en fonction réduisant les couches  $h_{nm1}$  et  $h_{nm2}$  de Cu sont bien expliquées par le modèle. Dans le premier cas, on observe une nette augmentation (+1000 Oe) du champ effectif traduisant une plus grande interaction dipolaire  $N_{12}$ , et donc favorisant une anisotropie OOP. Dans le deuxième cas, on observe effectivement une plus faible variation du champ effectif (-400 Oe), tel qu'expliqué au chapitre 3.

### 4.3 Réseaux de nanofils multicouches à comportement isotrope

Comme nous l'avons mentionné auparavant, un des intérêts de ces structures multicouches est de pouvoir contrôler l'anisotropie effective du réseau en fonction de paramètres géométriques. Les résultats de modélisation présentés au chapitre 3 montrent qu'il était possible de déterminer conditions où l'anisotropie effective tendrait vers zéro, c'est-à-dire que le réseau se comporterait de façon isotrope sous l'influence d'un champ magnétique. Un des objectifs de ces travaux est de démontrer qu'il est effectivement possible d'obtenir expérimentalement ces réseaux de nanofils isotropes. Bien qu'en pratique, nous avons démontré qu'il nous est difficile pour l'instant de bien contrôler l'épaisseur des couches, nous présentons ici les résultats sur deux échantillons montrant un comportement magnétique isotrope.

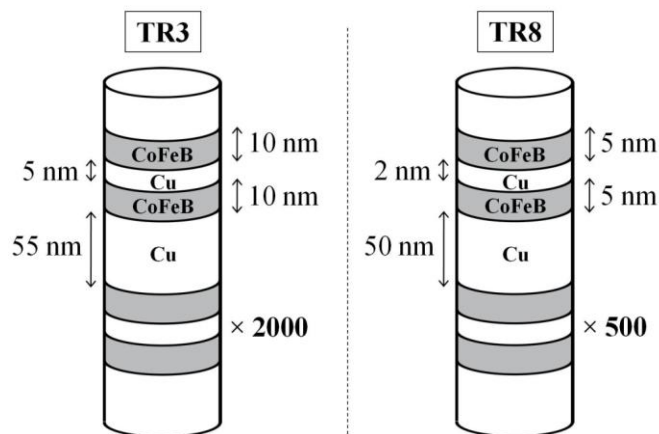


Figure 4.22 : Dimensions ciblées des couches magnétiques et non-magnétiques des nanofils constituant les réseaux de nanofils isotropes.

La Figure 4.22 présente les dimensions ciblées des nanofils constituant les réseaux étudiés. Les deux sont caractérisés par des couches de CoFeB petites (respectivement 10 nm et 5 nm) par rapport au diamètre (45 nm) ainsi qu'un très faible espacement de Cu entre les couches ferromagnétiques (respectivement 5 nm et 2 nm). La couche de Cu inter-tricouche mesure quant à elle environ 50 nm. L'échantillon TR3 est semblable au TR6, qui présentait une anisotropie planaire, mais contient environ 2000 tricouches au lieu de 100 (pour le TR6) ce qui devrait augmenter l'effet de forme intrafil et favoriser une anisotropie axiale s'opposant à l'anisotropie

planaire. L'échantillon TR8 contient 500 tricouches, avec les épaisseurs les plus faibles réalisées pour ce travail.

Nous avons effectué des mesures par VSM de l'hystérésis en fonction de l'angle du champ magnétique par rapport à l'échantillon. Les résultats sont présentés à la [Figure 4.23](#), où seulement l'hystérésis des directions IP et OOP sont présentées. Le champ coercitif et l'aimantation rémanente en fonction de l'angle  $\gamma$  sont aussi présentés. Comme on peut le constater sur les courbes d'hystérésis parfaitement superposées, les deux réseaux de nanofils ont un comportement magnétostatique de l'aimantation isotrope, et ce autant dans le régime saturée que non-saturé. Les angles intermédiaires ne sont pas présentés ici mais se comportent de façon identique aux angles principaux.

L'approche à saturation est très différente dans les deux cas, avec TR3 approchant la saturation beaucoup plus lentement ( $H_{\text{sat}}$  vers 12 kOe) que TR8 ( $H_{\text{sat}}$  vers 5 kOe). On remarque également que l'échantillon TR3 présente une faible coercivité de l'ordre de 100 Oe ainsi qu'une faible rémanence de l'ordre de 10% de  $M_s$ . Dans le cas de l'échantillon TR8, la coercivité (10-13 Oe) et la rémanence (1% de  $M_s$ ) sont presque nulles. La variation angulaire du champ coercitif et de l'aimantation rémanente est extrêmement faible comme on peut le constater au côté droit de la [Figure 4.23](#). L'aimantation nulle de l'échantillon TR8 pourrait indiquer un alignement antiparallèle de l'aimantation des couches jumelles (au sein d'une tricouche) à champ magnétique nul.

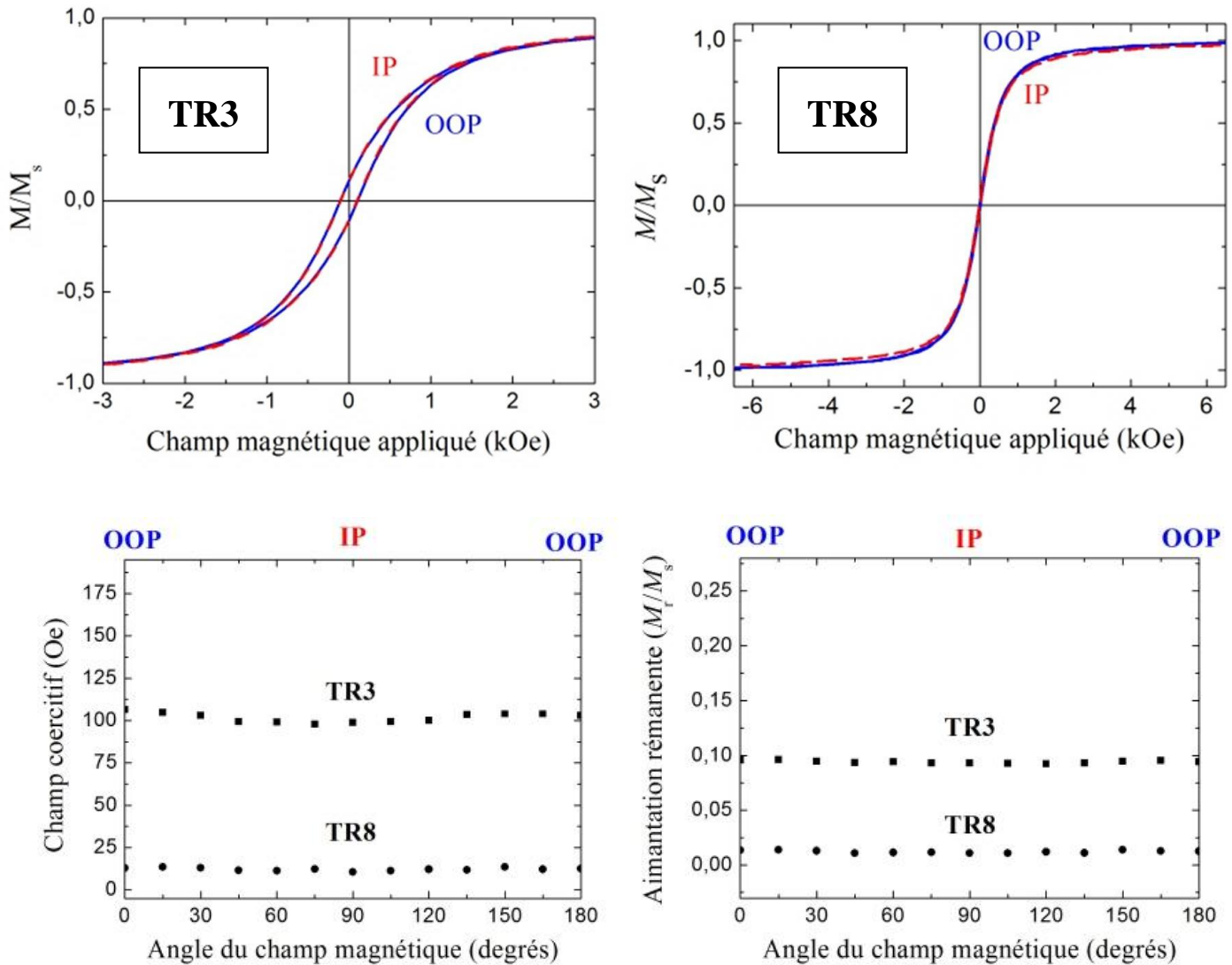


Figure 4.23 : (Haut) Hystérésis pour les deux directions principales des échantillons TR3 et TR8. (Bas) Champ coercitif et aimantation rémanente en fonction de l'angle du champ magnétique pour les deux échantillons.

Nous avons également mesuré la résonance ferromagnétique de l'échantillon TR3 pour des fréquences de 24 et 31 GHz. Nous n'avons pas été en mesure d'effectuer de mesure FMR sur l'échantillon TR8 (nous avons réalisé longtemps après les mesures que l'échantillon était isotrope). La Figure 4.24 présente les mesures FMR pour l'échantillon TR3. On observe que les propriétés dynamiques ne varient que très peu selon l'angle. Les courbes de résonances se déplacent légèrement de 400 Oe vers la gauche en passant de OOP à IP à 24 GHz. À 31 GHz, la

variation du champ de résonance est encore plus faible, soit d'environ 200 Oe. Ces variations sont beaucoup plus faibles que pour les échantillons tricouches présentés plus haut, ceux-ci affichant des variations de plusieurs milliers d'Oersted. Une variation angulaire aussi faible du champ de résonance est une preuve supplémentaire du caractère isotrope de ces réseaux de nanofils.

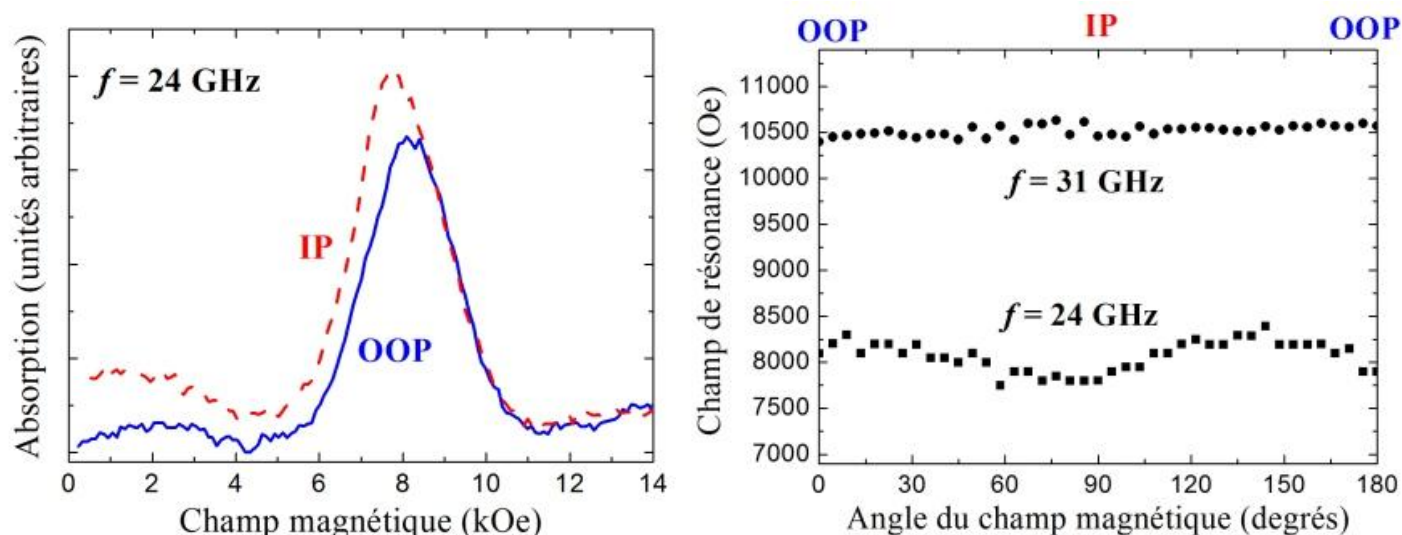


Figure 4.24 : Mesures FMR sur l'échantillon TR3 ( $10/5/10/55 \times 2000$ ) à 24 GHz et 31 GHz. (Gauche) Absorption électromagnétique en fonction du champ magnétique pour les deux configurations IP/OOP. (Droite) Champ de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué par rapport aux nanofils.

Le

Tableau 4.5 présente les résultats du champ effectif obtenu par le modèle d'anisotropie effective. Nous nous serions attendus à obtenir des valeurs proches de 0 pour que le modèle prédise un comportement isotrope. On voit au contraire ici que le modèle d'anisotropie ne permet pas de prédire un champ effectif nul pour les structures géométriques ciblées par ces deux échantillons. Il est possible d'une part que les épaisseurs réelles soient différentes de celles ciblées, mais le champ effectif prédit par le modèle est trop grand par rapport à 0 pour que l'écart soit expliqué par l'erreur sur les épaisseurs. Une explication plus probable proviendrait de

contributions à l'anisotropie supplémentaires qui seraient caractéristiques des faibles épaisseurs de couches, par exemple l'interaction d'échange.

Tableau 4.5 : Champ effectif  $H_{\text{eff}}$  calculé avec le modèle d'anisotropie effective. La taille du réseau utilisée dans le calcul numérique est de 200 (environ  $400 \times 400$  nanofils).

Échantillon	Géométrie	$H_{\text{eff}}$ (Oe), ( $4\pi 10^{-3}$ Oe = 1 A/m)	
		Calculs numériques	Éqs. analytiques
CoFeB/Cu-	$h_m/h_{nm} \text{ (nm)} \times N$		
TR3	<b>10/5/10/55</b> $\times 2000$	-3920	-6320
TR8	<b>5/2/5/50</b> $\times 500$	-7590	-9820

#### 4.4 Synthèse

Nous avons montré dans ce chapitre les résultats de magnétométrie statique (VSM) et de résonance ferromagnétique (FMR) pour divers échantillons de nanofils bicouches et tricouches. Nous avons vu que les champs effectifs prédits par le modèle surestimait fortement les valeurs trouvées expérimentalement, bien que l'écart soit moindre pour les résultats de FMR. Cela n'est pas surprenant sachant que le modèle de résonance ferromagnétique faisait l'hypothèse que l'aimantation était saturée et uniforme, conditions que l'on respecte plutôt bien avec les champs de résonance dans nos expériences. Dans le cas du VSM, nous avons basé le calcul du champ effectif sur un modèle de champ moyen en prenant les pentes des courbes d'hystérésis à  $M = 0$ , ce qui est loin de refléter nos hypothèses d'aimantation saturée. On a également vu que les équations analytiques ne décrivent pas bien les interactions entre bicouches. Cela est principalement dû à la perte de l'hypothèse selon laquelle les couches voisines à la tricouche de référence puissent être traitées comme des macrospins. Dans ce cas, le modèle numérique s'applique mieux comme il intègre les contributions dipolaires infinitésimales sur tout le volume des couches. Enfin, l'anisotropie de forme domine l'anisotropie lorsque les couches ferromagnétiques sont minces et notre modèle ne prend pas bien en compte le calcul de l'anisotropie de forme, que ce soit par l'expression pour un cylindre ou une ellipsoïde oblate.

Nous avons également observé dans les tricouches des double-résonance ferromagnétiques, ce qui indique que l'interaction dipolaire entre les deux couches jumelles permet d'exciter deux modes de résonance. Ces effets double-pics semblent clairement plus apparents dans les expériences à basses fréquences, donc à plus faibles champs lorsque l'échantillon n'est pas totalement saturé. Il semble donc plus probable d'exciter deux modes de résonance lorsque l'aimantation n'est plus uniforme. Des travaux futurs devraient aborder la déconvolution des deux pics de résonance afin d'en déterminer le comportement angulaire.

Les résultats de résonance ferromagnétique sont très intéressants mais pour l'instant nous n'avons pas été en mesure de bien comprendre les interactions en jeu expliquant les double-pics de résonance et les formes périodiques de  $(H_{\text{res}}^{\text{exp}} - H_{\text{res}}^{\text{modèle}})$ . Il est clair que ces mesures cachent des contributions non prises en compte dans le modèle, par exemple une anisotropie magnétocristalline ou des interactions d'échange qui viendrait réduire la valeur absolue du champ effectif.

Enfin, nous avons été en mesure de démontrer expérimentalement qu'il était possible de synthétiser des réseaux de nanofils multicouches magnétiquement isotropes. Toutefois, le modèle prédit une forte anisotropie dans le plan (IP) pour les géométries ciblées par ces nanofils. Il serait étonnant d'obtenir des réseaux isotropes en ne tenant compte que des interactions dipolaires et de l'anisotropie de forme pour ces géométries. Cela signifie donc que d'autres contributions sont en jeu et des travaux futurs devraient focaliser sur la compréhension de ces contributions manquantes. Il est également très intéressant de constater que l'on peut obtenir des réseaux isotropes dont le comportement de l'aimantation est assez différent, allant même jusqu'à un comportement doux et anhystérétique.

Ces réseaux de nanofils tricouches semblent au final apporter beaucoup de surprises avec des comportements pour l'instant difficilement explicables avec les outils que nous avons

développés. Pour clore ce chapitre, nous aimerions partager brièvement un résultat encore étonnant sur les nanofils tricouches et qui démontre davantage les comportements variés que nous obtenons avec ces nanofils. La [Figure 4.25](#) présente les résultats de magnétométrie statique par VSM et montre que la rémanence est constante pour toutes les directions de champ magnétique alors que la coercivité varie assez significativement. Les dimensions exactes des couches ferromagnétiques sont difficiles à établir (mais probablement très minces, de l'ordre du nanomètre) et nous nous n'irons pas plus loin dans la compréhension de ce matériau.

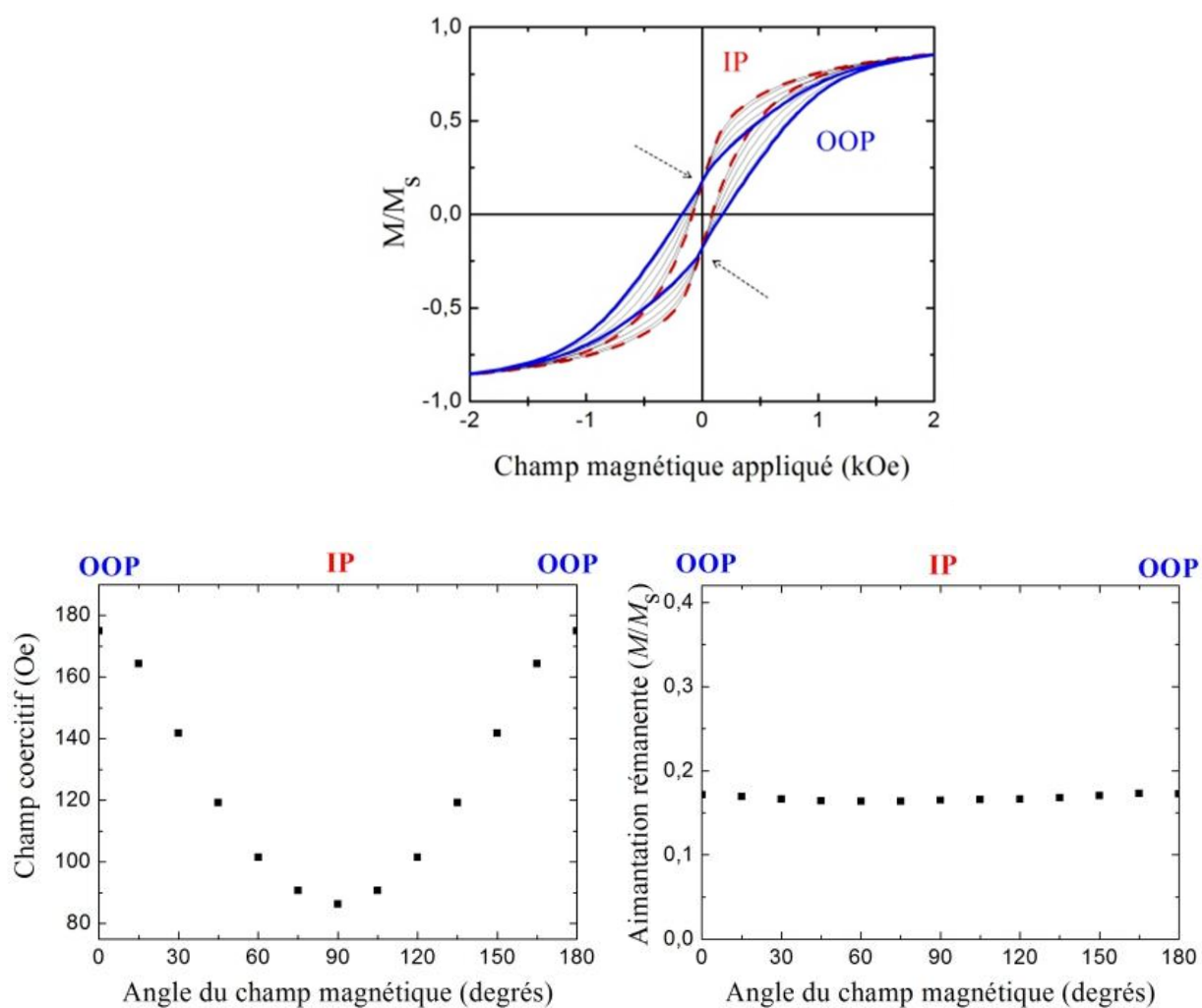


Figure 4.25 : Mesures VSM sur un réseau de nanofils tricouches affichant une rémanence constante et une coercivité variable.

## CHAPITRE 5    CONCLUSION

Dans le cadre de ces travaux, nous avons étudié le comportement magnétique statique et dynamique de réseaux de nanofils ferromagnétiques multicouches de CoFeB/Cu. Rappelons que les objectifs poursuivis par nos travaux étaient de:

1.    Maîtriser la fabrication des réseaux de nanofils ferromagnétiques multicouches
2.    Modéliser et prédire l'anisotropie de réseaux de nanofils tricouches en fonction de paramètres géométriques.
3.    Explorer les propriétés magnétiques statiques et dynamiques de ces réseaux et les confronter aux prédictions du modèle.
4.    Démontrer la faisabilité expérimentale de réseaux de nanofils magnétiquement isotropes

Pour adresser ces objectifs, nous avons procédé en plusieurs étapes. Nous avons tout d'abord (1) fabriqué une membrane d'alumine servant de matrice pour les nanofils multicouches. Nous avons ensuite (2) électrodéposé des nanofils multicouches de CoFeB/Cu dans la matrice d'alumine, puis (3) caractérisé structurellement les nanofils par MEB et par MET. Nous avons par la suite (4) élaboré un modèle d'anisotropie effective basé sur les interactions dipolaires entre couches ferromagnétiques. Enfin nous avons (5) mesuré les propriétés magnétiques statiques par VSM ainsi que (6) la résonance ferromagnétiques des réseaux de nanofils.

Dans le chapitre 2 nous avons vu qu'il restait encore beaucoup de travail afin de maîtriser la fabrication des réseaux de nanofils multicouches. Nous faisons face à des problèmes de reproductibilité des structures ciblées, ainsi qu'à une difficulté à caractériser les épaisseurs des couches ferromagnétiques et non-magnétiques. Du point de vue de la fabrication, nous avons proposé plusieurs pistes de développement pour améliorer le procédé. On pourrait remplacer le vernis servant à sceller la zone d'électrodéposition par une fine membrane adhésive et photosensible. Cette membrane rend la procédure beaucoup plus propre et permet de contrôler, par photolithographie, les zones où un dépôt est souhaité. La deuxième piste de solution consiste à optimiser les potentiels de dépôt pour les ions magnétiques et non-magnétiques pour éviter la

redissolution des couches ferromagnétiques lors des variations de potentiel. Enfin, la troisième piste consiste à contrôler rigoureusement le pH de la solution électrolytique, celui-ci pouvant affecter significativement la structure des couches déposées.

Afin d'améliorer la caractérisation structurelle des nanofils multicouches, nous suggérons d'utiliser une grille en nickel (Ni) recouverte de carbone. Cela permettrait probablement d'obtenir un meilleur contraste entre les couches puisqu'on éliminerait le signal de fond causé par la grille de cuivre. Une autre piste de solution serait de graver sélectivement les couches pour obtenir un contraste topographique des couches. Nous pourrions par exemple utiliser un agent chimique qui graverait plus rapidement l'une des deux couches et observer par la suite les nanofils au MET.

Dans le chapitre 3 nous avons développé un modèle d'anisotropie effective basé sur les interactions dipolaires entre couches ferromagnétiques et sur l'anisotropie de forme de ces couches. Un aspect important de ce développement a été de mettre en évidence l'interaction entre les deux couches jumelles, qui prend toute son importance dans le cas des tricouches isolées les unes des autres. Nous avons enfin développé des expressions analytiques simples afin de mieux faire ressortir le comportement de l'anisotropie en fonction des divers paramètres géométriques. Cela nous a permis de voir à quel point le champ effectif est très sensible à certains paramètres géométriques, notamment pour les faibles épaisseurs de couches. La divergence des résultats expérimentaux avec le modèle pointerait en faveur d'un traitement plus rigoureux de l'anisotropie de forme puisque cette contribution domine fortement le champ effectif pour les géométries de nanofils considérées dans ces travaux. Le terme d'interaction  $N_{12}$  est lui aussi d'autant plus important que la distance entre les couches jumelles est importante. Ce terme mis en évidence dans ces travaux est la principale différence avec le modèle développé par Carignan (2006) et mérite un traitement plus approfondie. Les facteurs  $N_{\text{intra}}$  et  $N_{\text{inter}}$  sont quant à eux de moindre importance dans la configuration tricouche, principalement à cause de l'épaisse couche de cuivre séparant les tricouches et minimisant les interactions dipolaires. Dans le cadre de notre analyse, nous n'avons pas exploité le cas où les aimantations des deux sous-réseaux ne seraient pas rigidement liées. Nous avons toutefois dressé les bases pour analyser ce cas général en déterminant les formes générales de l'énergie du système et les dérivées premières et secondes.

Nous pouvons donc utiliser ces résultats pour une étude plus approfondie de systèmes tricouches non rigidement liés.

Dans le chapitre 4, nous avons vu que les champs effectifs prédits par le modèle surestimait fortement les valeurs trouvées expérimentalement, bien que l'écart était moindre pour les résultats de FMR. On a également vu que les équations analytiques ne décrivaient pas bien les interactions entre bicouches puisque l'on perdait l'hypothèse selon laquelle les couches voisines à la tricouche de référence pouvaient être traitées comme des macrospins. Nous avons également observé dans les tricouches des double-résonance ferromagnétiques, ce qui indique que l'interaction dipolaire entre les deux couches jumelles permet d'exciter deux modes de résonance. Des travaux futurs devraient aborder la déconvolution des deux pics de résonance afin d'en déterminer le comportement angulaire et ainsi obtenir des informations sur les interactions expliquant ce deuxième mode de résonance à bas champ. Les travaux futurs devront mettre en évidence les contributions non prises en compte dans le modèle, par exemple l'anisotropie magnétocristalline ou des interactions d'échange.

Nous avons également démontré avec succès la faisabilité de synthétiser des réseaux de nanofils magnétiquement isotropes. Dans notre cas, nous avons fabriqué deux échantillons isotropes de comportement hystérétiques différents, dont l'un est anhystérétique. Ces matériaux sont particulièrement intéressants puisqu'il n'est pas évident en pratique de synthétiser des couches minces magnétiquement isotropes. Nous avons vu néanmoins que le modèle d'anisotropie, basé sur les interactions dipolaires et l'anisotropie de forme, ne permettait pas de prédire un champ effectif nul pour les structures géométriques ciblées par ces deux échantillons. Il est donc primordial pour la suite d'étudier les contributions supplémentaires à l'anisotropie qui seraient caractéristiques des faibles épaisseurs de couches, par exemple l'interaction d'échange. Cela permettra éventuellement d'établir des conditions précises pour obtenir des échantillons isotropes.

Nos travaux constituent à notre avis une base solide pour développer la compréhension des réseaux de nanofils multicouches. Comme souvent en recherche scientifique, ce mémoire apporte beaucoup plus de questions que de réponses, et démontre en quelque sorte la nature mystérieuse de la configuration tricouche et les possibilités de développement. En plus des développements proposés plus haut, une suite logique à ce projet est de mesurer la magnéto-résistance géante dans les nanofils tricouches et de tendre vers des mesures de transport en régime hyperfréquences. Cela permettrait éventuellement de démontrer des effets magnétodiélectriques dans ces réseaux, ce qui d'un point de vue technologique serait très intéressant. Il reste toutefois beaucoup de chemin à parcourir dans toutes les dimensions de ce projet : fabrication et caractérisation, modélisation, et mesures expérimentales. Je n'aurais pu souhaiter un projet plus complet que celui-ci pour un ingénieur, et j'espère que ce mémoire aura contribué au moins modestement à développer la compréhension d'un matériau plus qu'intéressant.

## BIBLIOGRAPHIE

- Béron, F. (2005), Propriétés magnétostatiques de nanofils ferromagnétiques et interactions dues à l'effet du réseau, M.Sc.A., École Polytechnique de Montréal, Qc., Canada.
- Berger, L. (1996), Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current. *Phys. Rev. B*, 54, 9353–9358.
- Blon, T., Matéfi-Tempfli, M., Matéfi-Tempfli S., Piraux, L., Fusil, S., Guillemet, R. et al. (2007), Spin momentum transfer effects observed in electrodeposited Co/Cu/Co nanowires, *J. Appl. Phys.*, 102, 103906.
- Blondel, A., Meier, J. P., Boudin, B., Ansermet, J.-P. (1994), Giant Magnetoresistance of Nanowires of Multilayers, *Appl. Phys. Lett.*, 65, 3019.
- Carignan, L.-P. (2007), Lacroix, C., Ouimet, A., Ciureanu, M., Yelon, A., Ménard, D., Magnetic anisotropy in arrays of Ni, CoFeB, and Ni/Cu nanowires, *J. Appl. Phys.*, 102, 023905.
- Carignan, L.-P. (2006), Étude des interactions dipolaires magnétiques dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques, M.Sc.A., École Polytechnique de Montréal, Qc., Canada.
- Carignan, L.-P., Cochrane, R.W. et Ménard, D., (2008), Design of a compensated signal rod for low magnetic moment sample measurements with a vibrating sample magnetometer, *Rev. Sci. Instrum.* 79, 035107.
- Chen, M., Chien, C.-L., Searson, P. C. (2006), Potential Modulated Multilayer Deposition of Multisegment Cu/Ni Nanowires with Tunable Magnetic Properties, *Chem. Mater.*, 18, 1595-1601.
- Ciureanu, M., Beron, F., Clime, L., Ciureanu, P., Yelon, A., Ovari, T.A., et al. (2005), Magnetic properties of electrodeposited CoFeB thin films and nanowire arrays, *Electrochimica Acta*, 50, 4487-4497.
- Darques, M., Encinas, A., Vila, L., Piraux, L. (2004), Controlled changes in the microstructure and magnetic anisotropy in arrays of electrodeposited Co nanowires induced by the solution pH, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 37, 1411-1416.

- Doudin, B., Redmond, G., Gilbert, S.E., Ansermet, J.-Ph. (1997), Magnetoresistance Governed by Fluctuations in Ultrasmall Ni(Ni)/Co Junctions, *Phys. Rev. Lett.*, 5 (79), 933-936.
- Dubois, S., Marchal, C., Beurken, J. M., Piraux, L., Duvail, J. L., Fert, A., George, J. M., Maurice, J. L. (2007), Perpendicular giant magnetoresistance of NiFe/Cu multilayered nanowires, *Appl. Phys. Lett.*, 70, 396-398.
- Fert, A., Baibich, M. N., Broto, J. M., Nguyen van Dau, F., Petroff, F. et al. (1988), Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices, *Phys. Rev. Lett.*, 61, 2472-2475.
- Fert, A. & Piraux, L. (1999), Magnetic nanowires, *J. Magn. Magn. Mater.*, 200, 338-358.
- Gravier, L., Fabian, A., Rudolf, A., Cachin, A., Wegrowe, J.-E., Ansermet, J.-Ph. (2004), Spin-dependent thermopower in Co/Cu multilayer nanowires, *J. Magn. Magn. Mater.*, 271, 153-158.
- Grünberg, P., Binasch, G., Saurenbach, F., Zinn, W. (1989), Enhanced Magnetoresistance In Layered Magnetic-Structures With Antiferromagnetic Interlayer Exchange, *Phys. Rev. B.*, 39, 4828.
- Huang, Q., Lye, W.-K. & Reed, M.L. (2007), Mechanism of isolated pore formation in anodic alumina, *Nanotechnology*, 18, 405302.
- Jessensky, O., Müller, F., Gösele, U. (1998), Self-Organized Formation of Hexagonal Pore Structures in Anodic Alumina, *J. Electrochem. Soc.*, 145 (11), 3735-3740.
- Krebs, J. J., Lubitz, P., Chaiken, A., Prinz, G. A. (1991), Magnetoresistance origin for nonresonant microwave absorption in antiferromagnetically coupled epitaxial Fe/Cr/Fe(001) sandwiches, *J. Appl. Phys.*, 69, (8), 4795.
- Kuanr, B. K., Kuanr, A. V., Grünberg, P., Nimtz, G. (1996), Swept-frequency FMR on Fe/Cr/Fe trilayers ultrathin films; microwave giant magnetoresistance, *Phys. Lett. A*, 221, 245-252.
- Kuanr, B. K., Veerakumar, V., Marson, R. L., Mishra, S. R., Camley, R. E., Celinski, Z. (2009), Nonreciprocal microwave devices based on magnetic nanowires, *Appl. Phys. Lett.*, 94, 202505.

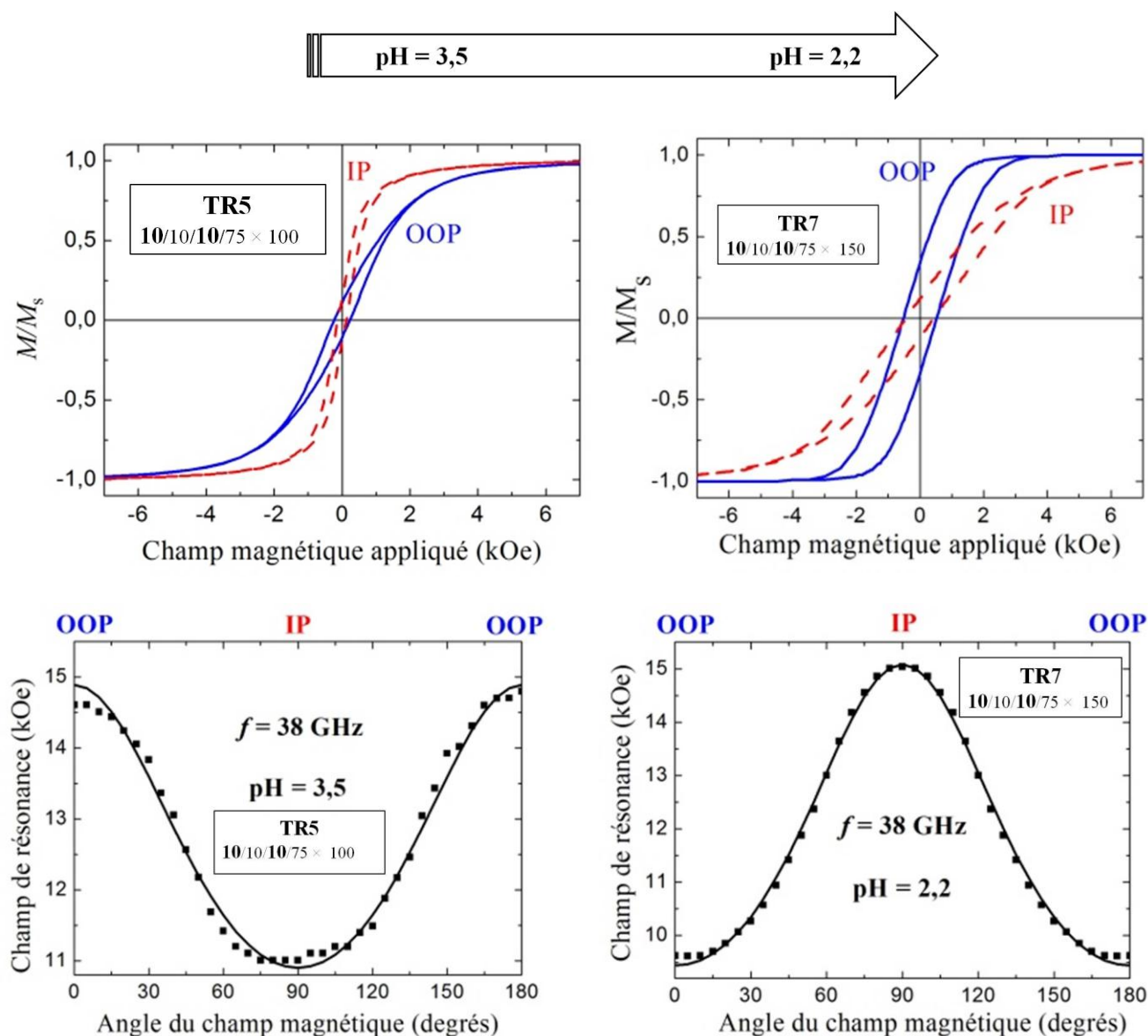
- Li, A.P., Müller, F., Birner, A., Nielsch, K., Gösele, U. (1998), Hexagonal pore arrays with a 50-420 nm interpore distance formed by self-organization in anodic alumina, *J. Appl. Phys.*, 84 (11), 6023-6026.
- Liang, H.-P., Guo, Y.-G., Hu, J.-S., Zhu, C.-F., Wan, L.-J., Bai, C.-L. (2005), Ni-Pt Multilayered Nanowire Arrays with Enhanced Coercivity and High Remanence Ratio, *Inorganic Chemistry*, 44, (9), 3013-3015.
- Lindner, J. et Baberschke, K. (2003), Ferromagnetic resonance in coupled ultrathin film, *J. Phys. Cond. Matter.*, 15, S465–S478.
- Liu, K., Nagodawithana, K., Searson, P. C., Chien, C. L. (1995), Perpendicular Giant Magnetoresistance of Electrodeposited Co/Cu Layered Nanowires, *Phys. Rev. B, Rapid Commun.*, 51, 7381.
- Masuda, H. & Fukuda, K. (1995), Ordered metal nanohole arrays made by a two-step replication of honeycomb structures of anodic alumina, *Science*, 268 (5216), 1466-1468.
- Mourachkine, A., Yazyev, O. V., Ducati, C., Ansermet, J.-Ph. (2008), Template Nanowires for Spintronics Applications: Nanomagnet Microwave Resonators Functioning in Zero Applied Magnetic Field, *Nano Letters*, 8 (11), 3683-3687.
- Murè, E., Bizière, N., Ansermet, J.-Ph. (2009), Lithography-free study of spin torque, *J. Magn. Magn. Mater.*, 322, 1443-1445.
- Osborne, J. (1945), Demagnetizing factors of the general ellipsoid. *Physical Review*, 67, 351-357.
- Peng, Y., Cullis, T., Möbus, G., Xu, X., Inkson, B. (2007), Nanoscale characterization of CoPt/Pt multilayer nanowires, *Nanotechnology*, 18, 485704.
- Piroux, L., Fert, A., George, J. M., Despres, J. F. et al. (1994), Giant Magnetoresistance in Magnetic Multilayered Nanowires, *Appl. Phys. Lett.*, 65, 2484.
- Possin, G.E. (1970), A Method for Forming Very Small Diameter Wires, *Rev. Sci. Instrum.*, 41, 772-774.
- Pozar, D.M. (2005), *Microwave Engineering*, 3<sup>ème</sup> édition, John Wiley and Sons, New York.

- Pullini, D., Busquets, D., Ruotolo, A., Innocenti, G., Amigo, V. (2007), Insights into pulsed electrodeposition of GMR multilayered nanowires, *J. Magn. Magn. Mater.*, 316, 242-245.
- Raman, V.I., & Palmese, G.R. (2006), Nanoporous Polymers - Design and Applications, Y. Gogotsi, *Nanomaterials Handbook*, CRC Press, Boca Raton, 585-603.
- Rausch, T., Szczurek, T., Schlesinger, M. (1998), High frequency giant magnetoresistance in evaporated Co/Cu multilayers deposited on Si(111) and Si(100), *J. Appl. Phys.*, 85, (1), 314.
- Rinkevich, A.B., Romashev, L. N., Ustinov, V. V., Kuznetov, E. A. (2003), High frequency properties of magnetic multilayers, *J. Magn. Magn. Mater.*, 254-255, 603-607.
- Ross, C.A., Farhoud, M., Hwang, M., Smith, Henry I., Schattenburg, M. L., Bae, J.M., Youcef-Toumi, K. (1998), Fabrication of Large Area Nanostructured Magnets by Interferometric Lithography, *IEEE Trans. Magn.*, 34, 4.
- Shi, D., Aktas, B., Pust, L., Mikailov, F. (2002), *Nanostructured Magnetic Materials and Their Applications*, Springer, Berlin.
- Skomski, R. (2008), *Simple Models of Magnetism*, Oxford University Press, Oxford.
- Slonczewski, J. C. (1996), Current-driven excitation of magnetic multilayers, *J. Magn. Magn. Mater.*, 159, L1-L7.
- Smit, J., et Beljers, H. G. (1955), Ferromagnetic resonance absorption in BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>, a highly anisotropic crystal, *Phillips Res. Rep.* 10, 113.
- Spiegel, J., de la Torre, J., Piraux, L., Huynen, I. (2009), Isolator concept based on ferromagnetic nanowired substrate, *International Microwave Symposium*, Boston.
- Sun, L., Hao, Y., Chien, C.-L., Searson, P.C. (2005), Tuning the properties of magnetic nanowires, *IBM J. Res. & Dev.*, 49, 1.
- Tandon, S., Beleggia, Y., Zhu, Y., De Graef, M. (2004), On the computation of the demagnetization tensor for uniformly magnetized particles of arbitrary shape, *J. Magn. Magn. Mater.*, 271 (1), 9.
- Thompson, S. M. (2008), The discovery, development and future of GMR: The Nobel Prize 2007, *J. Phys. D*, 41, 093001.

- Tsymbal, E.Y. et Pettifor, D.G. (2001), Perspectives of giant magnetoresistance, *Solid State Physics*, 56, 113-237.
- Valizadeh, S., George, J. M., Leisner, P., Hultman, L. (2001), Electrochemical synthesis of Ag/Co multilayered nanowires in porous polycarbonate membranes, *Thin Solid Films*, 402, 262-271.
- Velev, J. et Chang, Y.-C. (2002), Perpendicular Giant Magnetoresistance in Fe/Cr nanowires, *J. Magn. Magn. Mater.*, 250, 219-224.
- Wang, H., Cheng Wu, Y., Zhang, L., Hu, X. (2006), Fabrication and magnetic properties of Fe/Pt multilayered nanowires, *Appl. Phys. Lett.*, 89, 232508.
- Whitney, T. M., Jiang, J. S., Searson, P.C., Chien, C. L. (1993), Fabrication and Magnetic Properties of Arrays of Metallic Nanowires, *Science*, 261, 1316-1319.
- Zhao, S., Chan, K., Yelon, A., Veres, T. (2007), Preparation of open-through anodized aluminium oxide films with a clean method, *Nanotechnology*, 18, 245304.

## ANNEXE A – RENVERSEMENT DE L'ANISOTROPIE PAR VARIATION DU pH DE LA SOLUTION ÉLECTROLYTIQUE

Les figures suivantes montrent comment le pH de la solution électrolytique utilisée pour l'électrodéposition influence l'anisotropie effective des réseaux de nanofils. En faisant varier le pH de 3,5 (TR5) à 2,2 (TR7) l'anisotropie du réseau est complètement inversée, passant de plan facile (IP) à axe facile hors-plan (OOP). L'hypothèse serait que la variation de pH induit une structure cristalline du CoFeB dont l'anisotropie magnétocristalline est beaucoup plus forte que les interactions dipolaires et l'effet de forme des couches. Cette hypothèse reste par-contre à démontrer par une étude plus rigoureuse du phénomène.



## ANNEXE B – COMPOSITION DE LA SOLUTION ÉLECTROLYTIQUES DU COFEB

Les composés ci-dessous sont à incorporer dans un becher d'eau dans l'ordre présenté ici.

Composé	Concentration molaire requis (mol/L)	Masse molaire du composé (g/L)
$\text{CoSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0,176	281,0936
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0,03	278,01
$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	0,003	249,684
Diméthylaminoborane (DMAB)	0,007	58,916
Na saccharin	0,005	241,19
$\text{H}_3\text{BO}_3$	0,7	61,8307

## ANNEXE C – DÉTAILS DE FABRICATION DES NANOFILS

### Potentiel d'électrodéposition

CoFeB: -1 V

Cu: -0,56 V

La surface effective est calculée en mesurant la surface d'électrodéposition et en la multipliant par le facteur de porosité surfacique  $P$  de la membrane. Dans notre cas, nous avons toujours utilisé  $P = 0,12$ .

### Nanofils bicouches

Échantillon	Géométrie	Surface effective	Charge par couche (mC)	
			CoFeB ( $h_m$ )	Cu ( $h_{nm}$ )
AA	$5/5 \times 368$	0,13	2	1,9
AB	$10/10 \times 500$	0,132	3,8	3,6
AC	$50/10 \times 500$	0,086	12,3	2,3
Bi1	$50/50 \times 154$	0,125	17,9	3,3

## Nanofils tricouches

Échantillon	Géométrie	Surface effective	Charge par couche (mC)			
CoFeB/Cu-	$\mathbf{h_{m1}/h_{nm1} / h_{m2}/h_{nm2} (nm) \times N}$	cm <sup>2</sup>	CoFeB ( $h_m$ )	CoFeB ( $h_m$ )	Cu ( $h_{nm}$ )	Cu ( $h_{nm}$ )
AD	<b>10/10/10</b> /100 × 100	0,113	3,2	3,2	3,1	30,8
TR5	<b>10/10/10</b> /75 × 100	0,18	5,4	5,4	5,2	38,3
TR6	<b>10/5/10</b> /75 × 100	0,136	4,1	4,1	2,2	29
TR10	<b>20/5/20</b> /100 × 500	0,04	2,3	2,3	0,5	10,9
TR3	<b>10/5/10</b> /55 × 2000	0,044	1,1	1,1	0,5	6
TR8	<b>5/2/5/50</b> × 500	0,29	8,3	8,3	9,5	60

## ANNEXE D – DÉRIVÉES SECONDES DE L'ÉNERGIE MAGNÉTIQUE D'ANISOTROPIE

$$U_{\theta_i \theta_i} = 2K_i \cos(2\theta_i) + \left( \frac{K_{12} + K_{21} + K'_{12} + K'_{21}}{6} \right) [\cos \theta_i \cos \theta_j + \cos(\theta_i + \theta_j)] \\ + \mu_0 M_s H_0 \cos(\theta_i - \theta_H)$$

$$U_{\theta_1 \theta_2} = U_{\theta_2 \theta_1} = \left( \frac{K_{12} + K_{21} + K'_{12} + K'_{21}}{6} \right) [\sin \theta_1 \sin \theta_2 - \cos(\theta_1 + \theta_2)]$$

$$U_{\theta_i \varphi_i} = U_{\theta_i \varphi_j} = U_{\varphi_i \varphi_i} = U_{\varphi_i \varphi_j} = 0$$

avec  $j = \begin{cases} 1 & , \text{ si } i = 2 \\ 2 & , \text{ si } i = 1 \end{cases}$

## ANNEXE E – ÉNERGIE ET CHAMP EFFECTIF POUR DES AIMANTATIONS ANTIPARALLÈLES

Un cas particulier intéressant est lorsque les aimantations sont antiparallèles, soit pour où  $\theta_1 = \theta_2 + \pi = \theta$  et  $\varphi_1 = \varphi_2 + \pi$ . Dans ce cas, on montre que l'Éq. (3.42) devient:

$$U_{\text{anti}} = \left( K_1 - \frac{1}{3} K_{12} - \frac{1}{3} K'_{12} \right) \sin^2 \theta_1$$

On voit bien que dans le cas antiparallèle les contributions provenant des termes  $K_{12}$  et  $K'_{12}$  viennent se soustraire à la constante  $K_1$ . On s'attend généralement à retrouver le cas antiparallèle lorsque les épaisseurs des couches deviennent suffisamment petites pour favoriser un alignement antiparallèle à champ nul. En ajoutant l'énergie de Zeeman, on obtient :

$$U_{\text{anti}} = 2K_{\text{anti}} \sin^2 \theta - 2\mu_0 M_s H_0 \sin \theta_H \sin \theta$$

Les dérivées premières et secondes deviennent :

$$U_{\theta, \text{anti}} = 4K_{\text{anti}} \sin \theta \cos \theta - 2\mu_0 M_s H_0 \sin \theta_H \cos \theta$$

$$U_{\theta\theta, \text{anti}} = 4K_{\text{anti}} \cos 2\theta + 2\mu_0 M_s H_0 \sin \theta_H \sin \theta$$

On obtient le champ effectif d'anisotropie dans la configuration antiparallèle en minimisant l'énergie :

$$U_{\theta, \text{anti}} = H_{\text{eff}}^{\text{anti}} \sin \theta_0 \cos \theta_0 - H_0 \sin \theta_H \cos \theta_0 = 0$$

$$H_{\text{eff}}^{\text{anti}} = \frac{2K_{\text{anti}}}{\mu_0 M_s} = K_1 - \frac{1}{3} K_{12} - \frac{1}{3} K'_{12}$$