THÈSE

présentée par

Olivier REDON

pour obtenir le titre de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER GRENOBLE I

(arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

Spécialité : PHYSIQUE

COMPORTEMENTS MAGNETIQUES DANS LES SYSTEMES MULTICOUCHES ET GRANULAIRES Ag/FeNi ET Ag/FeCo POUR LE DEVELOPPEMENT DE CAPTEURS MAGNETORESISTIFS

Date de soutenance : 12 Juin 1996

Composition du jury:

Messieurs:	P. BOYER	Président
	C. CHAPPERT	Rapporteur
	J.C. OUSSET	Rapporteur
	J.M. FEDELI	
	B. RODMACQ	
	J. PIERRE	
	B.DIENY	

Thèse préparée au sein du laboratoire de Magnétisme Louis NEEL C.N.R.S. -GRENOBLE
& du CEA-Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée -GRENOBLE

REMERCIEMENTS

Le travail présenté dans ce mémoire est le fruit d'une collaboration étroite entre le laboratoire de magnétisme Louis Néel du C.N.R.S. Grenoble, dirigé par Monsieur Dominique GIVORD et le laboratoire de métallurgie Physique du Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée du C.E.N.G., dirigé par Monsieur André CHAMBEROD. Je les remercie pour leur accueil chaleureux et pour l'opportunité qu'ils m'ont offerte de m'initier à la Recherche.

Je remercie Monsieur Pierre BOYER, Professeur à l'Université Joseph Fourier de Grenoble, d'avoir présidé le Jury de cette thèse.

Je remercie très sincèrement Messieurs Claude CHAPPERT, Directeur de Recherche à l'Institut d'Electronique Fondamentale et Jean Claude OUSSET, Professeur à L'I.N.S.A. Toulouse, d'avoir accepté d'être rapporteur de ce mémoire. J'ai été très sensible à l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et aux intéressantes discussions qui en ont découlé. Je suis également très reconnaissant à Messieurs Bernard RODMACQ et Jean Marc FEDELI, Ingénieurs C.E.A., d'avoir participé au Jury et d'avoir grandement contribué à la réussite de ce travail par leur précieuse collaboration.

Monsieur Jacques PIERRE, Directeur de Recherche au C.N.R.S., a co-dirigé cette thèse. Qu'il reçoive ici toute ma gratitude pour sa gentillesse, sa disponibilité et ses judicieux conseils pour orienter mon travail. Un grand merci également à Monsieur Bernard DIENY, ingénieur C.E.A., codirecteur de thèse pour avoir initié ce travail et m'avoir guidé avec patience et compétence dans les dédales de la magnéto-résistance.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à tous ceux qui ont participé à ce travail notamment Madame Pierrette AURIC, ingénieur C.E.A. pour son aide dans les mesures de spectroscopie Mössbauer, Monsieur Jean Luc ROUVIERE, ingénieur C.E.A. pour les superbes images de microscopie haute résolution, Monsieur Sergio TEIXEIRA, chercheur à l'institut de Physique à Porto Alegre pour son inestimable contribution dans l'étude des systèmes granulaires et Monsieur Anatoly VEDYAEYEV, Professeur au département de Physique de l'université de Lomonosov à Moscou, pour les fructueuses discussions sur les théories du transport dans les systèmes granulaires.

Enfin une mention particulière pour tous ceux que j'ai côtoyés, dérangés, distraits, promenés, écoutés ou aimés pendant ces quatre merveilleuses années, qu'ils soient membres du laboratoire, Docteurs confirmés ou en devenir, joueurs de Volley, ou musiciens de Jazz Band... je ne vous oublierai pas !

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE.....7

PARTIE A : HISTORIQUE

CHAPITRE I : LES SYSTEMES A MAGNETO-RESISTANCE D'HIER ET D'AUJOURD'HUI.....13

Introduction.....15
I. Principe et application de l'AMR.....16
II. Les nouveaux matériaux.....24
Conclusion.....34

PARTIE B : LES SYSTEMES MULTICOUCHES

CHAPITRE II : FABRICATION DE COUCHES MINCES PAR PULVERISATION CATHODIQUE MAGNETRON.....39

Introduction.....41
I. Principe des pulvérisations cathodiques.....42
II. Fabrication de couches minces par pulvérisation triode.....46
Conclusion.....48

CHAPITRE III : MAGNETO-RESISTANCE GEANTE DANS DES SYSTEMES A FAIBLES CHAMPS DE SATURATION.....51

Introduction.....53
I. Choix des multicouches.....53
II. Caractérisation structurale des échantillons par RX.....56
III. Caractérisation magnétique.....62
IV. Tenue thermique des multicouches Ag/FeNi.....75
Conclusion.....80

CHAPITRE IV : COUPLAGES BILINEAIRES ET BIQUADRATIQUES DANS LES SYSTEMES Ag/FeNi ET Ag/FeCo.....83

Introduction.....85
I. Les origines du couplage biquadratique.....85

II. Modèle analytique de GMR avec couplage biquadratique.....89
III. Evidence d'un terme biquadratique dans les systèmes Ag/FeNi et Ag/FeCo.....93
IV. Modèle des « pin-holes » pour le système NiFe/Ag.....99
V. Modèle de spins indépendants ou structure en domaines aux fortes épaisseurs d'Ag.....104
VI. Optimisation de la structure magnétique pour des capteurs à forte sensibilité..118
Conclusion.....123

PARTIE C : LES SYSTEMES GRANULAIRES

CHAPITRE V : SYSTEMES HYBRIDES : « LES MULTICOUCHES GRANULAIRES ».....127

Introduction.....129
I. Evolution structurale des multicouches.....129
II. Une structure magnétique « hybride ».....130
III. Les traitements thermiques stabilisent la structure granulaire.....137
Conclusion.....139

CHAPITRE VI : CARACTERISATIONS STRUCTURALES ET MAGNETIQUES D'ALLIAGES HETEROGENES $Ag_{(1-x)}FeNi_x$ ET $Ag_{(1-x)}FeCo_x$.....141

Introduction.....143
I. Caractérisation structurale des alliages.....143
II. Caractérisation magnétique des alliages.....150
Conclusion.....166

CHAPITRE VII : TRANSPORT DANS LES SYSTEMES GRANULAIRES.....169

Introduction.....171
I. De la MR de désordre de spin à l'AMR: L'effet de concentration.....171
II. Corrélation entre transport et microstructure.....182
III. Amélioration des propriétés par traitements thermiques.....191
Conclusion.....195

CONCLUSION GENERALE.....197

REMARQUE PRELIMINAIRE SUR LE SYSTEME D'UNITE UTILISE

Dans le domaine du magnétisme l'utilisation du système d'unités international est peu adapté, compte tenu des faibles valeurs des grandeurs physiques mesurées; le système d'unités électro-magnétiques (u.e.m) lui est donc le plus souvent préférré. Tout au long de cette thèse, nous adopterons ce second système d'unités, par souci de commodité et afin de comparer directement nos résultats avec ceux de la littérature.
Cependant nous fournissons ci-dessous une table de conversion entre les deux systèmes pour ceux qui ne seraient pas famillier du système des u.e.m.

Grandeur physiques	u.e.m c.g.s	S.I
Induction magnétique B	**1 Gauss**	**10^{-4}T**
Champ magnétique H	**1 Oersted**	**$10^{3}/4\pi$ A.m^{-1}**
Susceptibilité χ	**1 emu.cm^{-3}.Oe^{-1}**	**4π (sans dim.)**
Moment magnétique μ	**1 erg.G^{-1}≡emu**	**10^{-3}A.m^2≡10^{-3}J.T^{-1}**
Aimantation M par unité de volume	**1 erg.G^{-1}.cm^{-3}≡emu.cm^{-3}**	**10^{3}A.m^{-1}**
Constante d'anisotropie K	**1 erg.cm^{-3}**	**10^{-1}J.m^{-3}**

Dans le système international $B=\mu_0(H+M)$
Dans le système u.e.m c.g.s $B=H+4\pi M$

Constantes universelles	u.e.m c.g.s	S.I
μ_0	**1 (sans dim.)**	**$4\pi.10^{-7}$ T.m.A^{-1}**
μ_B	**9.274015.10^{-21} erg/G**	**9.274015.10^{-24} J.T^{-1}**
k_B	**1.3803.10^{-16} erg/K**	**1.3803.10^{-23} J/K**

INTRODUCTION GENERALE

Depuis la fin des années 80, le magnétisme des couches minces a connu un formidable essor grâce à l'avènement des **systèmes artificiels**. Ces nouveaux matériaux, issus des importants progrès des techniques d'élaboration de ces 20 dernières années, ont rapidement suscité l'intérêt des théoriciens comme des expérimentateurs.

D'un point de vue fondamental, les **couches ultra-minces** constituent des systèmes modèles pour étudier l'influence des basses dimensionalités et des effets d'interfaces, prédits théoriquement. La réduction de la coordination atomique et la brisure de symétrie à l'interface sont ainsi à l'origine de modifications de l'amplitude du moment atomique mais surtout de l'apparition possible d'une forte anisotropie perpendiculaire. D'autre part, en réalisant un empilement alterné de couches ultra-minces de matériaux magnétiques et non magnétiques (appelé **multicouches**), une équipe américaine a pu mettre en évidence l'existence d'un couplage indirect à travers la couche non magnétique, qui oscille en fonction de l'épaisseur avec une période bien supérieure à celle prédite théoriquement par le modèle RKKY (Ruderman Kittel Kasuya Yosida). Les formalismes utilisés dans les matériaux massifs doivent donc être réadaptés pour comprendre les phénomènes apparaissant dans ces nouvelles structures artificielles.

Au niveau des applications, les propriétés de ces nouveaux matériaux sont très prometteuses. Par exemple, la forte anisotropie perpendiculaire induite par les effets d'interface peut vaincre l'anisotropie de forme de la couche mince et provoquer un basculement de l'aimantation perpendiculairement aux plans des couches. Cette propriété ouvre de nouvelles perspectives très intéressantes dans le domaine de l'enregistrement haute densité.
Le couplage oscillant présente lui aussi une propriété remarquable: En effet pour certaines épaisseurs le couplage inter-couches définit un alignement antiparallèle des aimantations, responsable d'une forte valeur de la résistivité du système. En appliquant un champ magnétique suffisamment fort on parvient à casser le couplage antiferromagnétique et à aligner les aimantations; on observe alors une chute de la résistivité très importante pouvant atteindre 100% à basse température. Ce phénomène appelé Magnéto-Résistance Géante (GMR), compte tenu de son amplitude, a été observé pour la première fois en 1988 dans une multicouche Fe/Cr. Les applications de cette GMR sont nombreuses: capteurs de champ (détecteur de proximité, boussole, capteur de courant), têtes de lecture intégrées pour disques durs ou bandes magnétiques, billeterie magnétique...

En 1992 Berkowitz et al ont montré que le phénomène de GMR n'était pas une exclusivité des systèmes multicouches, mais qu'il pouvait apparaître dans d'autres systèmes artificiels tels que les **alliages granulaires**; l'unique critère responsable de l'apparition de la GMR étant une non colinéarité des aimantations en champ nul.

L'objectif de cette thèse est de rechercher et d'étudier des systèmes multicouches ou granulaires susceptibles d'être de bons candidats pour des applications dans le domaine des capteurs de champs ou des têtes de lecture. Pour y parvenir nous devrons toujours garder à l'esprit les trois critères définissant un bon capteur: **sensibilité, linéarité** et **tenue thermique**.
- La sensibilité définit l'aptitude du système à réagir en champs faibles. Une tête de lecture volant à 1µm d'un disque dur doit détecter un champ magnétique de l'ordre de 5Oe; nous devrons donc privilégier les systèmes qui présentent une variation importante de la GMR dans cette valeur de champ.
- La linéarité n'est pas le critère primordial, mais elle simplifie le traitement électronique en éliminant les problèmes d'asymétrie du signal recueilli.
- Le problème de la tenue thermique est surtout sensible lors du développement technologique où certaines étapes échauffent les substrats jusqu'à 250°C! Il est important que les systèmes ne subissent pas de dommages irréversibles, comme la formation d'alliages ou une déstratification (perte de la structure multicouche), qui nuiraient aux propriétés de transport.

Après deux chapitres introductifs aux divers systèmes à magnéto-résistance et aux techniques de dépôt, nous aborderons la première grande partie de ce mémoire dédiée aux multicouches. Le chapitre 3 présente les résultats quantitatifs des propriétés structurales et magnétiques des deux systèmes que nous avons retenus pour leurs faibles champs de saturation. Nous montrerons qu'une interprétation cohérente des caractéristiques obtenues nécessite l'introduction d'un second terme de couplage entre couches favorisant des orientations non colinéaires des aimantations. Nous nous attacherons dans le chapitre 4 à mettre en évidence ce terme, à évaluer son intensité et à étudier ses comportements avec la structure et la température. Ces analyses corrélées à la structure et au mode de dépôt nous permettront d'émettre des hypothèses réalistes quant aux origines de ce terme. Enfin nous montrerons qu'il est possible de définir un processus d'optimisation de la sensibilité des systèmes multicouches avec un point de fonctionnement ajustable entre l'ambiante et 280°C.

La seconde partie consacrée aux systèmes granulaires débutera par l'analyse de structures hybrides, formées de multicouches granulaires (Ch 5) puis nous analyserons les propriétés structurales et magnétiques d'alliages granulaires proprement dits (Ch 6) qui nous aideront lors de l'interprétation des propriétés de transport du Ch 7. Nous verrons que ces systèmes sont d'une grande complexité comparés aux multicouches à cause du caractère statistique de nombreux paramètres (taille de grains, champs d'échange...). Néanmoins nous essayerons de faire ressortir les points importants pour définir des capteurs de champs utilisables.

PARTIE A

HISTORIQUE

CHAPITRE I

LES SYSTEMES A MAGNETO-RESISTANCE D'HIER ET D'AUJOURD'HUI

INTRODUCTION.....15

I. PRINCIPE ET APPLICATION DE L'AMR.....16
I.A. Description du phénomène.....16
I.B. Relation avec les paramètres microscopiques.....17
I.C. Optimisation dans les systèmes d'alliages de Ni.....20
I.D. Les capteurs de champs magnéto-résistifs.....21

II. LES NOUVEAUX MATERIAUX.....24
II.A. Des propriétés remarquables.....24
II.B. Les systèmes à magnéto-résistance géante.....27
II.B.1. Les multicouches.....27
II.B.2. Autres systèmes présentants de la GMR.....31

CONCLUSION.....34

INTRODUCTION

L'étude de la résistivité sous champ magnétique des métaux et alliages a connu depuis un siècle un réel développement, tant pour son intérêt technologique, que pour sa compréhension théorique. Cette magnéto-résistance (MR), apparait dans de nombreux matériaux, du fait de ses origines physiques diverses.

Dans les métaux par exemple, une MR positive est observée si l'on applique un champ magnétique perpendiculairement à la direction du courant (Loi de Kohler). Le Bismuth, qui présentait d'excellentes caractéristiques de sensibilité, fut largement utilisé dans les années 60-70, comme détecteur de champs faibles.

De fortes réductions des dimensions d'un matériau sont aussi à la source d'une résistivité magnétique, car elles affectent le libre parcours moyen électronique (lpme). Le champ magnétique, par son action sur la trajectoire des électrons (force de Lorentz) permet d'accroître le lpm et ainsi de réduire cette résistivité anormalement élevée (formule de Drude). White et Woods[1] ont pu observé une MR négative de 40% à 4.2K dans un fil de Na de 0.13 mm de diamètre.

Mais le phénomène magnéto-résistif le plus important pour ses applications potentielles reste l'Anisotropie de la Magnéto-Résistance (AMR) découverte en 1857 par William Thomson[2] dans les matériaux ferromagnétiques. Il observa que la non colinéarité de l'aimantation avec la direction du courant était responsable de l'apparition d'une MR anisotrope. En effet, en appliquant un champ magnétique transversalement au courant, la résistivité prenait une valeur très différente de celle de la configuration longitudinale, où l'aimantation était parallèle au courant. Cette propriété que possédent beaucoup de matériaux ferromagnétiques trouva une application un siècle plus tard grâce à R Hunt[3], qui en 1971 proposa de l'utiliser comme capteur de flux pour les systèmes à enregistrement magnétique, en remplacement des capteurs inductifs. Il possédait 2 principaux avantages sur ceux-ci:

1) un rapport Signal/Bruit très élevé permettant une miniaturisation pour les systèmes à très haute densité de stockage.

2) une sensibilité au flux et non plus aux variations de flux, qui permet de conserver une densité de stockage constante sur toute la surface du disque, même près du centre où la vitesse de rotation est réduite.

Vingt ans plus tard, IBM lanca sur le marché[4] le premier système utilisant le capteur MR pour la lecture des disques durs.

Ce premier chapitre, largement bibliographique, introduira plus concrètement dans une première partie, le phénomène d'AMR (que nous retrouverons par la suite dans les systèmes granulaires) dans son principe et ses développements technologiques; la seconde partie présentera la montée de nouveaux matériaux, depuis une dizaine d'années, susceptibles de suplanter les anciens capteurs. Cette revue assez succinte de l'état de l'art des systèmes magnéto-résistifs n'est pas exhaustive, puisque nous ne traiterons pas de ceux qui présentent

une transition semi-conducteur/métal lié au magnétisme[5]. Cependant elle nous permettra de bien définir le cadre de la thèse et d'analyser les secteurs à explorer.

I. PRINCIPE ET APPLICATION DE L'A.M.R.

I.A. Description du phénomène.

Dans les matériaux ferromagnétiques, l'anisotropie des courbes d'aimantation avec l'orientation du champ magnétique est simplement due à l'anisotropie magnéto-cristalline qui favorise certaines directions faciles (Fig I.1 a). Au niveau des caractéristiques de transport (Fig I.1 b), c'est l'orientation du champ par rapport au courant qui crée une anisotropie de la MR. Pour H//I (H1) la variation de résistivité est positive, alors qu'elle est négative pour H⊥I (H2). L'AMR est donc caractérisée par des variations de signes opposés.

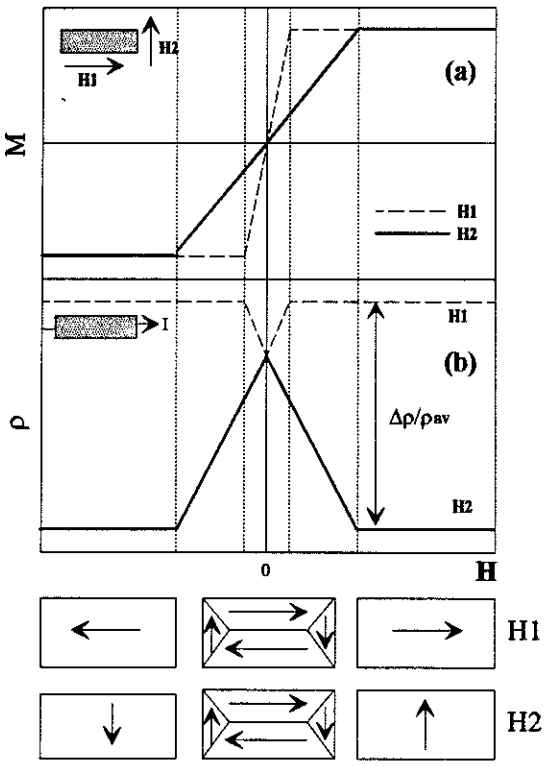


Figure I.1:Représentation simplifiée des courbes d'aimantation (a) et de résistivité (b) dans un barreau ferromagnétique. L'AMR est représentée par la différence de résistivité entre la configuration H1 (H//I) et H2 (H⊥I). Les schemas au dessous montre l'évolution des aimantations pour des champs appliqués selon H1 ou H2.

La résistivité en champ nul est liée à la répartition des domaines dans les couches. Pour une équipartition des directions d'aimantation en volume, les amplitudes en configurations

transverses et longitudinales seraient respectivement de 2/3 et 1/3, car il y aurait deux fois plus de configurations où M⊥I. La présence d'une anisotropie qui favorise certaines directions d'aimantation, change ce rapport d'assymétrie, comme dans notre illustration.
L'AMR est généralement définie comme la différence de résistivité entre la configuration parallèle et transverse, normalisée par la résistivité moyenne:

$$\frac{\Delta\rho}{\overline{\rho}} = \frac{\rho_{//} - \rho_{\perp}}{\frac{1}{3}\rho_{//} + \frac{2}{3}\rho_{\perp}}$$

Cette AMR est souvent faible, mais peut tout de même atteindre 25% à 4.2K dans certains alliages optimisés comme $Ni_{70}Co_{30}$, et 6% à 300K dans $Ni_{81}Fe_{19}$[6]. Par contre, les champs de saturations étant très faibles (≅10 Oe), ces systèmes atteignent des sensibilités remarquables (0.3%/Oe).

Alors que la compréhension phénomènologique de l'AMR est aisée, son explication microscopique l'est beaucoup moins. Dans des alliages de type métaux/terre-rares où le magnétisme des électrons de la couche 4f est très localisé, l'AMR peut être attribuée à la diffusion des électrons de conduction par la distribution de charge quadrupolaire[7] des électrons de la couche 4f.
Dans les métaux de type 3d où le magnétisme est itinérant, l'origine de l'AMR est bien plus complexe. Il semble qu'elle soit liée d'une part à une diffusion anisotrope des électrons s et d, du fait de densités d'états différentes, au niveau de Fermi, pour les deux types de spin des électrons 3d, et au couplage spin-orbite (S.O) qui en agissant sur les niveaux d'énergie des électrons 3d, rend la probabilité de diffusion des électrons s dépendante de l'orientation de l'aimantation par rapport au flux électronique[5].

I.B. Relation avec les paramêtres microscopiques

De nombreux modèles théoriques se sont attachés à relier l'AMR à des paramètres microscopiques, mais pour les métaux 3d, la controverse était vive, quant à l'importance à accorder au couplage S.O.
Mott[8], dès 1935, suggère que dans les métaux ferromagnétiques, les électrons peuvent se répartir en deux groupes, ayant des directions de quantification de spin, soit parallèle soit antiparallèle à la direction de l'aimantation. Le transport du courant se fait alors indépendamment et en parallèle par ces deux groupes de spin. L'hypothèse physique sur laquelle repose ce modèle, tient au fait que le terme de diffusion conservant le spin domine largement celui des collisions inélastiques avec retournement de spin. Cette remarque est d'autant plus vraie que l'on descend en température, puisque les collisions inélastiques sont principalement dues aux fluctuations thermiques des aimantations. Certains auteurs la

considèrant cependant justifiée à toutes températures, nous admettrons dans les calculs qui suivent que le terme inélastique peut être négligé.

Des calculs basés sur ce modèle, dit à deux courants, ont permis d'obtenir une expression de la résistivité pour des alliages dilués et concentrés, dans la limite d'une faible diffusion par les impuretés[9] :

$$\rho = \frac{\rho\uparrow \rho\downarrow}{\rho\uparrow + \rho\downarrow} \tag{1}$$

où $\rho_\uparrow$ et $\rho_\downarrow$ sont les résistivités associées aux électrons de conduction des deux types de spin.
Dans les systèmes ferromagnétiques, l'AMR, telle que nous l'avons définie précédemment peut se dériver de l'équation (1) moyennant une approximation qui permet de tenir compte du couplage S.O[10] :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \gamma(\alpha - 1) \tag{2}$$

où γ est une constante qui dépend de la force des interactions spin-orbite et $\alpha=\rho_\uparrow/\rho_\downarrow$.
Ces deux équations ont permi d'analyser qualitativement le comportement des propriétés de transport dans les alliages de nickel, mais l'équation (2) s'est révèlée inadaptée pour corréler les résultats expérimentaux[11] dans les alliages dilués. En effet, la courbe d'AMR en fonction du paramètre α ne varie pas linéairement comme le laisse penser l'équation (2) mais plutôt suivant une hyperbole. Dorleijn et al, suite à une étude expérimentale approfondie sur des alliages dilués à base de nickel développèrent une relation générale reliant l'amplitude de l'AMR au seul paramètre α, les autres paramètres étant fixés par les résultats expérimentaux.

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\alpha}{1+\alpha}\left(\frac{\Delta\rho\uparrow}{\rho\uparrow}\right) + \frac{1}{1+\alpha}\left(\frac{\Delta\rho\downarrow}{\rho\downarrow}\right) \tag{3}$$

Cette équation qui rend bien compte du comportement de l'AMR avec le terme α, semble malgré tout insuffisante lorsque α devient grand. On constate en effet que le deuxième terme de l'équation (3) devient très vite négligeable, alors que le premier tend vers une valeur constante. La courbe en pointillés de la figure I.2 illustre bien cet effet de saturation pour $\alpha>5$, qui n'est pas observé pour les points expérimentaux.

Muth[12] et al reprenant l'équation (3) en introduisant des termes de couplages S.O dans l'expression des termes $\Delta\rho\uparrow$ et $\Delta\rho\downarrow$ par une « fonction de corrélation force-force », ont obtenu une expression dépendant du paramètre α et des paramètres (γ_1, γ_2, μ) caractérisant les interactions S.O:

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = \left(\frac{\gamma_1}{\alpha} - \gamma_2 \right) \frac{\mu^2 - \alpha^2}{1 + \alpha} \qquad (4)$$

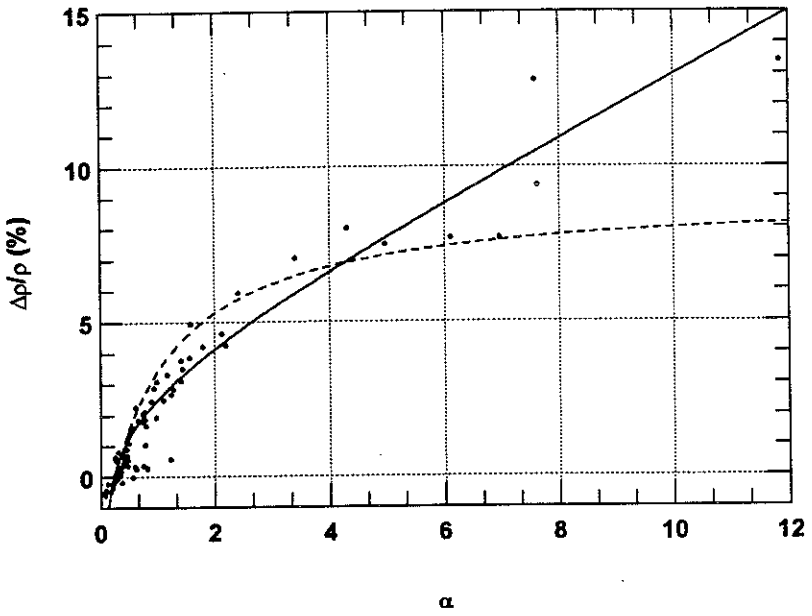


Figure I.2:Comportement de l'AMR en fonction du paramètre α pour des alliages de Ni dilués (points). La comparaison en les modèles de Dorleijn en pointillés et celui de Muth en trait continu montre la limite du premier pour α>5.

Cette forme contrairement à la précédente ne sature pas avec α et montre un comportement bien en accord avec les points expérimentaux (figure I.2, trait continu). Toutefois il faut noter la grande dispersion des valeurs expérimentales (rapport de 1 à 4) pour une même valeur de α, ce qui montre bien que ces relations donnent simplement une idée de l'évolution de l'AMR sans complétement expliquer les différences observées.

L'évolution de ces modèles fait bien sentir le rôle très important du couplage S.O. Il intervient selon Mc Guire[6], lors de la levée de dégénérescence des moments orbitaux, par les interactions électrostatiques, pour créer des orbitales e_g et t_{2g}. Au niveau des électrons d de spins minoritaires, il existe un déficit d'une de ces deux orbitales car le niveau de Fermi vient s'intercaler entre elles. Les densités d'état au niveau de Fermi sont donc différentes pour les deux types de spin, provoquant une diffusion dépendante du spin des électrons s. Ceci correspond à la dépendance de l'AMR avec le terme α.
Lorsque l'aimantation va tourner sous l'influence du champ magnétique, le couplage S.O, va modifier le peuplement des orbitales, pour les électrons de spins minoritaires, en jouant sur leurs énergies. La diffusion sd, responsable de la résistivité, va donc être altérée, provoquant le

phénomène d'AMR. Le mécanisme d'AMR est ainsi lié à une variation du terme α du fait du couplage S.O.

Schwarz[13] a observé un déficit en orbitales e_g pour la bande de spin minoritaire, beaucoup plus important dans le Co que le Fe. La variation de peuplement sera donc bien plus sensible, comme le prouve leurs AMR respectives de 1.9% et 0.2% à 300K.
Cependant, une trop grande différence d'énergie entre les orbitales peuplées et non peuplées, peut nuire à l'AMR, car le couplage S.O, s'il est trop faible ne parvient pas à en modifier les peuplements. Mc Guire quantifie cet effet par le terme K/ε, où K représente la force du couplage spin-orbite et ε la différence d'énergie entre le dernier niveau peuplé et le premier non peuplé pour les spins minoritaires. Il a montré que l'AMR est d'autant plus forte que K/ε est grand. Dans certains cas, comme $Co_{70}Fe_{30}$, que nous avons étudié, aucune AMR n'est observée, alors que le terme α est fort, ce qui semble indiquer que soit le couplage S.O est trop faible, soit ε est trop important.

Remarque: Cette AMR, liée principalement aux couplage S.O, apparait indépendemment de la Magnéto-Résistance Géante dans les multicouches. Elle se surimpose simplement à l'amplitude de la GMR.

I.C. Optimisation dans les systèmes d'alliages de Ni

Les paramètres essentiels qui régissent l'AMR étant les moins accessibles, une étude systèmatique de différents alliages a été entreprise. La condition d'une valeur élevée du terme α, qui représente le déséquilibre des densités d'état de chaque type de spin est toutefois nécessaire, bien que non suffisante. De trop faibles valeurs de ce terme ruinent aussi toutes possibilités d'une forte AMR.

L'étude de différents alliages a rapidement montré que ceux à base de nickel possédaient de fortes valeurs d'AMR. En effet, $Ni_{75}Co_{25}$ et $Fe_{18}Ni_{82}$ présentent tous deux des amplitudes supérieures à 15% à 4.2K et de 4 à 6% à 300K, $Ni_{92}Cu_8$ pour sa part atteint 7% à 4.2K.
Les résistivités $\rho\uparrow$ et $\rho\downarrow$ des deux sous bandes d, calculées par Muth et al., pour les alliages NiFe, NiCo et NiCu laissent clairement apparaître que le maximum d'écart entre $\rho\uparrow$ et $\rho\downarrow$ n'est pas forcement associé à la plus forte AMR. Dans NiCo par exemple, le plus fort écart apparait autour de 32% de Co et dans NiCu autour de 18% de Cu. On est loin alors du maximum d'AMR. Remarquons tout de même que α est élevé dans les zones de forte AMR, puisqu'il atteint 16 et 12 dans $Ni_{75}Co_{25}$ et $Ni_{82}Fe_{18}$ et 6 dans $Ni_{92}Cu_8$. On trouve ainsi confirmation que le terme α n'est pas le seul élément pour caractériser l'amplitude du phénomène.

Dans les régions de forte AMR, d'autres paramêtres microscopiques semblent prendre des valeurs particulières. C'est le cas de la constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 et de celle de magnétostriction λs, qui sont minimisées pour les concentrations en Fe ou Co citées précédemment. Ces valeurs particulières sont très interressantes pour les applications car elles permettent de réduire au maximum le champ de saturation.

I.D. Les capteurs de champ magnéto-résistifs

I.D.1. Le système « barber pole » ouvre la voie.

Envisageons maintenant le phénomène d'AMR d'un point de vue plus technologique, pour mettre en évidence les contraintes liées au développement de capteur de champ. Considérons un barreau de FeNi, dont l'aimantation en champ nul, Ms (aimantation uniforme dans tout le barreau), est alignée suivant l'axe facile, que l'on impose paralléle à la direction du courant et dans la grande longueur. Lorsqu'on applique un champ magnétique transversalement au barreau, la direction de l'aimantation va faire un angle θ avec le courant. La résistivité mesurée selon la grande longueur (configuration magnéto-résistive) s'écrit alors[14] :

$$\rho(\theta) = \rho_{\perp} + \Delta\rho.\cos^2\theta \qquad (5)$$

L'aimantation My qui apparait lors de la rotation de l'aimantation dans le champ est My=Ms.H/Hk, où H_k représente le champ d'anisotropie qu'il faut vaincre pour sortir l'aimantation de l'axe facile. La minimisation des termes d'énergies Zeeman et d'anisotropie permet d'écrire My/Ms=H/Hk=sinθ; ainsi on peut relier la résistivité au champ appliqué par la relation:

$$\rho(H) = \rho_{\perp} + \Delta\rho\left(1 - \left(\frac{H}{H_k}\right)^2\right) \qquad (6)$$

Cette forme de la résistivité appelle plusieurs remarques:

1) l'équation (5) montre que $\rho(\theta)=\rho(\theta+\pi)$, donc l'effet magnéto-résistif que l'on obtient est peu intéressant car il ne permet pas de différencier deux états d'aimantations opposées, comme par exemple les deux configurations magnétiques représentant un 1 ou un 0 sur un média.

2) La dépendance en $\cos^2\theta$ ne permet qu'une faible sensibilité pour de petits changements de l'aimantation. La meilleure sensibilité se situant pour des variations de l'aimantation autour de 45°.

Vu l'intensité des champs de fuite qui apparaissent entre les domaines magnétiques dans les médias, il ne faut pas compter saturer l'aimantation dans la direction transverse. Les variations de l'angle de l'aimantation relativement faibles, n'apportent qu'une variation réduite de la

résistivité. Toutefois une solution pour améliorer la sensibilité et linéariser la réponse, consiste à incliner le courant à 45° par rapport à l'axe facile. l'équation (6) s'écrit alors:

$$\rho(H) = \rho_{\perp} + \Delta\rho.\left(\frac{1}{2} + \frac{H}{Hk}\sqrt{1-\left(\frac{H}{H_k}\right)^2}\right) \qquad (7)$$

La Figure I.3 illustre les améliorations apportées par l'inclinaison du courant. Partant du principe qu'il fallait orienter le courant ou le champ à 45° pour obtenir un capteur performant, les ingénieurs ont essayé diverses solutions technologiques. L'avancée la plus significative est venue du système dit « Barber Pole », dans lesquel des éléments conducteurs de courant sont inclinés à 45° par rapport à l'axe facile et prennent en sandwich l'élément magnétorésistif.

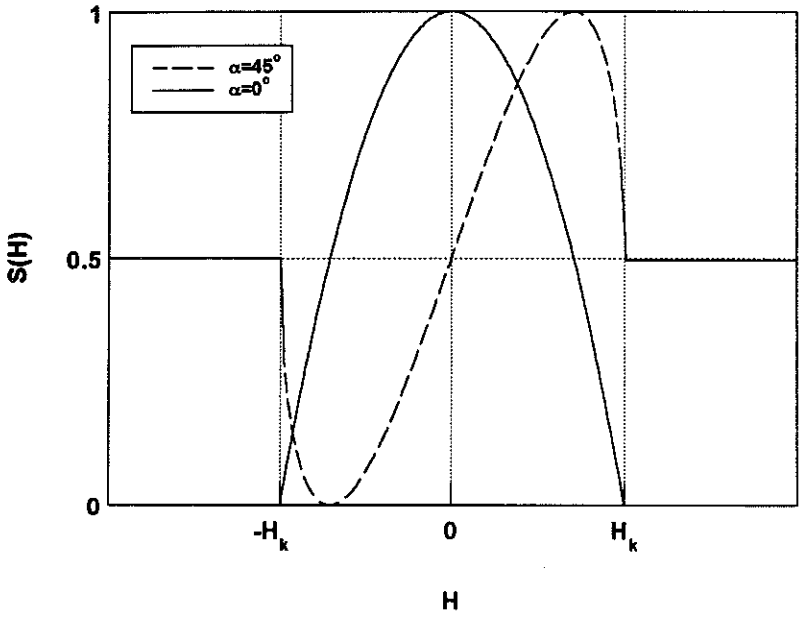


Figure I.3: Variation de la fonction $S(H)=(\rho(H)-\rho_{\perp})/(\rho_{//}-\rho_{\perp})$ pour les deux configurations de courant.

Les systèmes à AMR, tels que l'alliage $Ni_{80}Fe_{20}$ ou $Ni_{65}Fe_{15}Co_{20}$, qui présentaient une AMR de l'ordre de 2 à 4% à 300K dans des champs de saturation très faibles d'environ 5Oe pour le premier et 16Oe pour le second, connurent alors un important développement comme tête de lecture, et sont utilisés depuis 1994 dans la plupart de nos disques durs. Par contre l'alliage $Ni_{70}Co_{30}$, qui était le plus magnétorésitif n'a pu être développé du fait du résidu que magnétostriction.

I.D.2. Un record de sensibilité avec les nouvelles technologies.

Le paragraphe précédent présentait une mesure de résistivité longitudinale (configuration magnéto-résistive), mais il existe une autre configuration, appelée effet Hall planaire qui correspond à une mesure de la tension transverse, i.e. dans la largeur du barreau. Bien qu'il porte le même nom, il ne faut pas le confondre avec l'effet Hall classique où le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la couche et non pas transversalement, comme dans le cas de l'effet Hall planaire.
Cette mesure de résistivité transverse, liée à la partie antisymétrique de la résistivité, n'est pas affectée par les effets de fluctuations de température et d'aimantation, qui sont sources de bruits; elle est donc de ce fait bien plus propre que la mesure classique. La tension mesurée, nulle en champ nul, n'apparait qu'avec la rotation de l'aimantation. La résistivité associée à l'application du champ magnétique s'écrit donc:

$$\rho(H) = \Delta\rho.\frac{H}{Hk}\sqrt{1-\left(\frac{H}{Hk}\right)^2} \qquad (8)$$

Cette configuration, qui donne la même forme d'équation que dans la mesure longitudinale avec θ=45°, confère d'emblée le meilleur compromis sans avoir à utiliser d'artifice du type « Barber Pole ».

Ce type de mesure n'est pas nouveau, mais il n'a jusqu'à présent pu être utilisé car la résistivité qui apparait est bien trop faible par rapport aux bruits résiduels pour produire un signal exploitable. Récemment l'apparition de nouvelles méthodes de synthèse de matériaux a permis d'augmenter considérablement la qualité cristallographique des matériaux pour des couches ultraminces, limitant ainsi de nombreuses sources de bruit. Schull[15] et al. sont parvenus avec la technique d'Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM) à faire croître un film ultrafin de FeNi de très haute qualité. En piégeant l'aimantation de cette couche active par une multicouche de Fe/Pd, qui impose un fort couplage ferromagnétique à travers toute l'épaisseur de la couche; ils assurent un alignement parfait de l'aimantation en champ nul. Ainsi ils peuvent obtenir un effet magnétorésistif maximum et aucune tension parasite en champ nul.
Grâce à ces couches et à la technique de mesure par effet Hall planaire, ils parviennent à détecter des champs de l'ordre de 10^{-3} Oe en continu et jusqu'à 10^{-4} Oe en alternatif, ce qui constitue un record de sensibilité.

II. LES NOUVEAUX MATERIAUX.

II.A. Des propriétés remarquables.

Grâce au développement dans les années 80 des techniques d'élaboration sous vide et ultravide, il est devenu possible de synthètiser des matériaux complétement artificiels, qui ne trouvent aucun équivalent dans la nature.
La méthode de pulvérisation cathodique utilise un plasma de gaz ionisé (généralement d'argon) pour arracher des atomes d'une cible, qui sont projetés sur un substrat placé en vis à vis. Le vide dans l'enceinte, de l'ordre de 10^{-6} torr, permet des vitesses de dépôt d'environ 0.7Å/s. Il est donc possible de fabriquer des couches polycristallines d'épaisseur très réduite, ou des empilements de couches, que l'on appelera multicouches. Une autre méthode, plus lente mais plus propre, permet de déposer des couches épitaxiées ou des superréseaux, en arrachant les atomes d'une cible par bombardement électronique. Cette épitaxie par jets moléculaires (EJM) s'obtient sous des vides très poussés de l'ordre de 10^{-10} torr. Les vitesses de dépôt deviennent alors suffisamment lentes pour laisser aux atomes le temps de s'ordonner cristallographiquement. Dans les deux paragraphes suivants, nous verrons les propriétés originales, associées à la croissance de couches isolées ou de multicouches, par ces nouvelles méthodes.

II.A.1. Propriétés des couches isolées.

Dans les métaux 3d, le moment magnétique porté par les électrons délocalisés de la bande d, est sensible aux effets d'environnement. Les atomes de surface, en contact avec le vide, ayant un nombre de coordination réduit, voient leur bande d subir des modifications (rétrécissement, augmentation de la densité d'état...) qui entrainent généralement un accroissement du moment. Lors de la croissance d'une couche à la surface du matériau magnétique, on a pu observer des variations du moment des atomes magnétiques, dans un sens ou dans l'autre selon le métal adjacent[16,17].

L'anisotropie qui régit le comportement de l'aimantation dans les matériaux magnétiques est la somme de plusieurs contributions. Le terme de champ démagnétisant, associé aux interactions dipolaires, est proportionnel à l'aimantation. Dans les couches épaisses il domine tous les autres termes et impose une aimantation dans le plan. Le terme d'anisotropie magnétocristalline de volume, qui dans le cas des cristaux uniaxes ou cubiques avec une direction de croissance [111], peut favoriser un axe perpendiculaire à la couche, ne peut jamais contrecarrer l'effet du champ démagnétisant. Par contre, le terme d'anisotropie de surface proportionnel à S=V/t (t étant l'épaisseur du matériau magnétique) peut pour des épaisseurs suffisamment faibles, disons de l'ordre de 10Å parvenir à dominer l'effet de champ démagnétisant, et donc favoriser une aimantation spontanée perpendiculaire à la couche[18]. Un

tel effet a provoqué un fort intérêt pour ce genre de recherche, dans le cadre d'enregistrement perpendiculaire à ultra haute densité. La figure I.4 illustre ce phénomène pour une multicouche Co/Pd

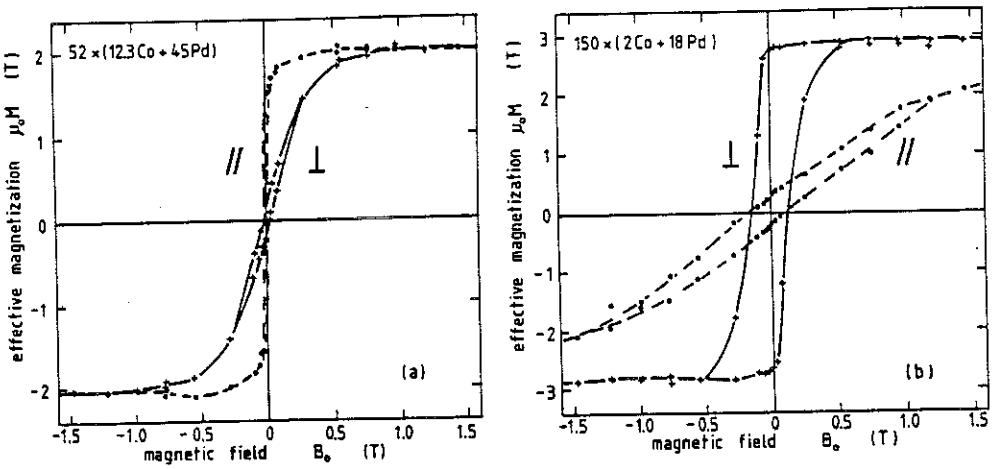


Figure I.4: Courbes d'aimantation à 300K pour des champs magnétiques paralléles au film (pointillés) et perpendiculaires (trait continu) dans des multicouches Co/Pd. (a) 12.3Å de Co et 45Å de Pd, (b) 2Å de Co et 18Å de Pd. D'aprés [18].

Un dernier effet que l'on peut citer pour ces couches isolées est la stabilisation de phases cristallographiques lors de dépôt par épitaxie. Alors que le Fe massif est bcc au dessous de 1180K, une phase hcp[19] du Fe a pu être stabilisée dans un superréseau hcp Fe/Ru que l'on a fait croître sur un substrat Ru (0001).

II.A.2. Propriétés des systèmes en multicouches.

Lorsqu'un atome magnétique est placé dans un environnement non magnétique, son moment induit une polarisation du spin des électrons de conduction alentours, qui oscille alors rapidement, avec une période caractéristique $\lambda=\pi/k_F$ ($\cong$2Å). S'il existe un second atome magnétique assez proche, il va subir une polarisation positive (couplage Ferromagnétique) ou négative (couplage Antiferromagnétique AF) de la part du premier atome par le biais de ces électrons polarisés. Ce type de couplage indirect est connu sous le nom d'interaction RKKY (Ruderman Kittel Kasuya Yosida), son intensité est proportionnelle à d^{-3}, ou d est la distance au premier site magnétique. Dans les multicouches, où les couches magnétiques alternent avec celles non magnétiques; Yafet[20] a montré que les interactions d'échange entre couches étaient oscillantes avec l'épaisseur d de la couche non magnétique; L'intensité des interactions variant cette fois en d^{-2} à cause du caractère bi-dimensionnel des multicouches.

L'existence d'un couplage antiferromagnétique entre couche de Fe à travers le Cr a été prouvée pour la première fois dans un sandwich Fe/Cr/Fe par diffusion Brillouin[21] et

diffraction d'électron de basse énergie à spin polarisé (SPLEED)[22]. Un peu plus tard Parkin[23] démontra par des mesures de magnéto-résistance, qu'effectivement le couplage oscillait entre ferromagnétique et antiferromagnétique selon l'épaisseur de la couche non magnétique dans les superréseaux Co/Ru, Co/Cr et Fe/Cr.

La période d'oscillation des couplages entre couches magnétiques apparut après ces premiers résultats bien supérieure à celle prédite par un simple couplage RKKY. Ce problème, longtemps mal compris, semble être le fait d'un effet de vernier entre les oscillations de couplage RKKY et le caractère discret de l'espacement entre les atomes. La figure I.5 illustre cet effet[24]. Si on prend une période caractéristique de l'oscillation RKKY λ=2.3Å et un espacement entre plans atomiques de d=1.8Å, on trouve une superpériode $\Lambda=\lambda d/(\lambda-d)$=8.3Å.

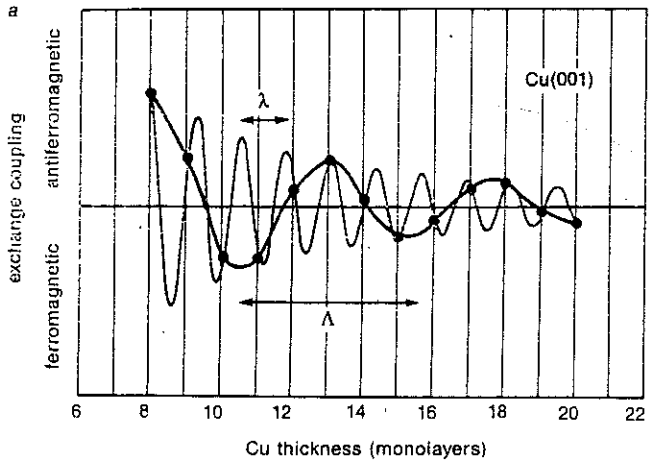


Figure I.5: Illustration de l'effet de convolution entre le couplage RKKY et l'empilement discret des plans atomiques, pour expliquer les grandes périodes d'oscillation du couplage dans les superéseaux. D'après [24].

Par la suite un modèle plus rigoureux invoquant des interférences entre les oscillations de longues et courtes périodes, définies par les formes de la surface de Fermi des matériaux non magnétiques, a été développé par Bruno et Chappert[25]. Il s'est révélé très bien corréler les résultats expérimentaux au niveau de la prédiction de la période d'oscillation, mais présentait des écarts significatifs pour d'autres paramètres[26].

II.B. Les systèmes à magnéto-résistance géante.

II.B.1. Les multicouches.

- Principe:

Suite à la découverte d'un couplage oscillant entre couches magnétiques, de nombreuses recherches ont été initiées, parmi celles ci, l'étude des propriétés de transport, a révélé dans le système épitaxié Fe/Cr un nouveau type de magnéto-résistance[27] de très forte amplitude (GMR). Par la suite, Parkin[22] et al ont réussi à trouver le même effet dans des multicouches préparées par pulvérisation cathodique, ce qui lança réellement l'intérêt pour ce type de matériau. De nombreuses études sur divers systèmes ont permis d'acquérir rapidement une connaissance assez approfondie au niveau expérimental des paramêtres essentiels.
Le principe de cette chute de résistivité est illustré par la figure I.6.

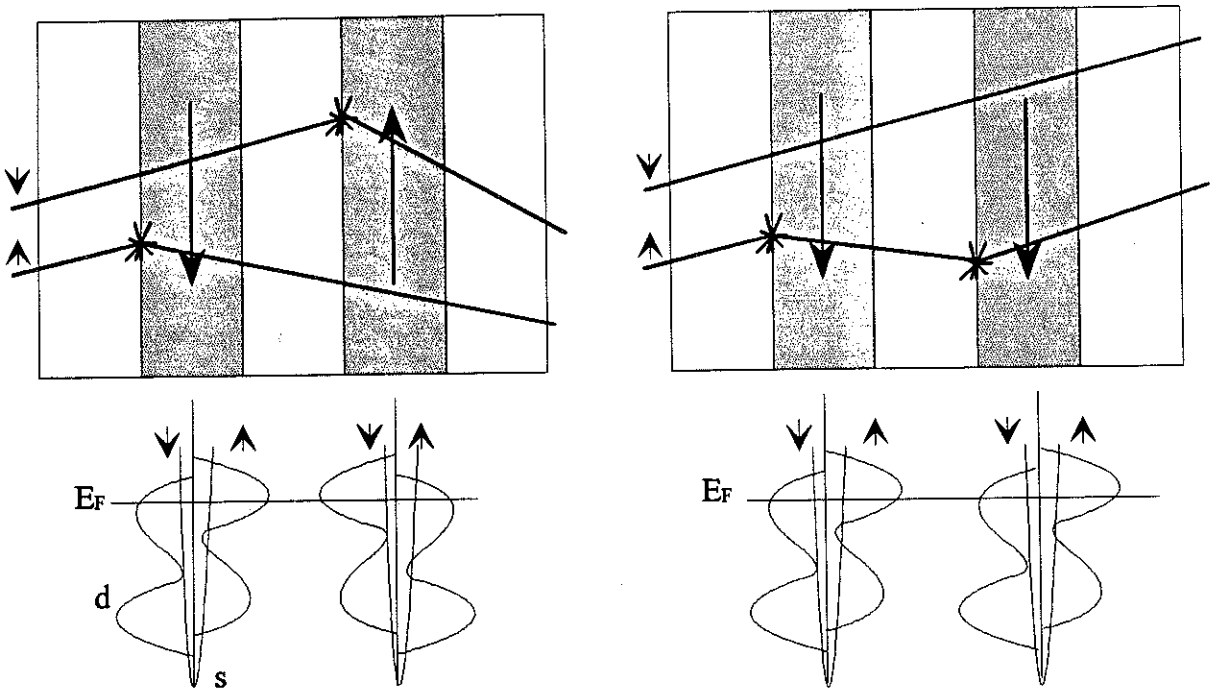


Figure I.6: Illustration schématique de la diffusion dépendante du spin, liée au caractère anisotrope de la diffusion sd.

Du fait de l'asymétrie des bandes d, il existe au niveau de Fermi, une différence de densités d'état entre les deux types de spin. Les électrons s qui vont entrer dans une couche magnétique, seront majoritairement diffusés par les électrons d qui présentent une forte densités d'état au niveau de Fermi. Ainsi dans la configuration en champ nul (droite), les électrons s de spin ↑ sont largement diffusés dans la première couche, où la densité en électrons d de même spin est bien plus forte que celle du spin opposé. Dans la couche suivante couplée AF les rôles s'inversent. La résistivité globale est la moyenne de $\rho\uparrow$ et $\rho\downarrow$. Après saturation (gauche), seul un type d'électron s est largement diffusé (ici ↑), l'autre est

quasiment court-circuité. Dans un modèle à deux courants, la résistivité résiduelle est plus faible soit $\rho\downarrow<<\rho\uparrow$. On observe donc une chute de résistivité importante qui a atteint 50% à 4.2K dans le premier système Fe/Cr.

La question de savoir si la diffusion dépendance du spin est prédominante à l'interface entre matériau magnétique et non magnétique ou à l'intérieur de la couche magnétique, reste assez controversée. En effet, des calculs théoriques[28,29] pour le système Fe/Cr montre que la majorité de la magnéto-résistance provient de la diffusion à l'interface. Au contraire le système d'alliage $Ni_{80}Fe_{20}$/Cu en multicouche semble présenter une diffusion interne prédominante[30], tout comme les modèles proposés pour le superréseau Co/Cu[31]. Cependant de récents rapports expérimentaux ont montré un accroissement sensible de la GMR dans des multicouches $Ni_{80}Fe_{20}$/Cu en ajoutant une fine couche de Co à l'interface[32], montrant que la diffusion d'interface pouvait être importante dans ces systèmes. Dans le même esprit, l'influence de la rugosité sur l'amplitude de GMR a été étudiée, mais reste elle aussi incertaine[33,34].

- <u>modèles théoriques:</u>

Une description cohérente du phénomène de GMR, doit faire intervenir 3 éléments essentiels, mis en évidence par les mesures expérimentales:
1) Une diffusion indépendante du spin due à la barrière de potentiel à l'interface.
2) Une diffusion dépendante du spin à l'interface (liée à la rugosité) et/ou dans le volume (impuretés diffusantes).
3) Une résistivité dépendante de l'orientation des aimantations dans les couches successives.

Une première approche **semi-classique**, développée par Camley et Barnas[35] se proposait de décrire le comportement général de la GMR dans les multicouches par une extension de la théorie phénomènologique de Fuchs[36] et Sondheimer[37]. Dans ce modèle, le transport des électrons à travers les couches est gouverné par l'équation de Boltzmann (9) et le cas particulier des multicouches est introduit par l'utilisation de conditions aux limites appropriées.

$$\frac{\partial g^{\sigma}}{\partial z}+\frac{g^{\sigma}}{\tau^{\sigma} v_z}=\frac{eE}{m v_z}\frac{\partial f_0}{\partial v_x} \qquad (9)$$

g^{σ}= correction de la fonction de distribution due à la diffusion locale et au champ électrique externe E. $\sigma=\uparrow(\downarrow)$.
f_0= Fonction de distribution d'équilibre.

Alors que la diffusion volumique dépendante du spin est contenue dans l'équation (9) avec les termes τ^{σ} qui définissent les temps de relaxation dans les couches pour les spins σ, la diffusion d'interface n'intervient elle que dans les conditions aux limites en introduisant un terme phénomènologique D^{σ} dépendant du spin. Cette différence de traitement des termes de

diffusion de volume et de surface, se ressent par la difficulté du modèle à obtenir des valeurs correctes de la résistivité et de la magnétorésistance avec un seul jeu de paramètres[38]. De plus, il a été montré que dans la limite où le lpm est très supérieur à l'épaisseur des couches, cette théorie est inéxacte car elle autorise les électrons à se propager parallèlement au interfaces; Il apparait donc des lpm beaucoup trop forts pour être réalistes[39]. Des améliorations successives[40] ont été apportées pour surmonter ce problème. Ainsi, l'introduction d'une zone de mélange à l'interface, au lieu d'un simple plan, où le lpm est réduit a permi d'obtenir des paramètres cohérents et comparables à d'autres modèles.

L'approche **quantique**, plus sophistiquée développée par Zhang[41] et al utilise le formalisme de Kubo pour étendre la théorie originale de Tesanovic[42] et al, aux systèmes multicouches. Une expression de la conductivité qui prend en compte sur un même plan, tous les termes de diffusion dépendant ou non du spin a pu être calculée:

$$\sigma = \frac{ne^2}{2m}\sum_{\sigma}\frac{1}{\Delta^{\sigma}} \tag{10}$$

Les termes Δ^{σ} représentent les contributions de la diffusion à l'intérieur ou à l'interface des couches. Cette équation est valable lorsque le libre parcours moyen est très supérieur à la distance entre les centres diffuseurs, i.e. à l'épaisseur de la couche non magnétique, donc pour des électrons qui sondent de manière cohérente les couches magnétiques. En calculant les Δ^{σ} dans les couches magnétiques et non magnétiques, ils ont pu obtenir une expression de la résistivité:

$$\rho(H) = \frac{m}{ne^2}\left(\gamma - \frac{\beta^2}{\gamma}\cos^2\theta(H)\right)$$

$$\text{avec} \begin{cases} \gamma = \dfrac{1}{a_0}\omega_m + \dfrac{2}{a+b}\omega_i + \dfrac{p^2}{a+b}\left(\dfrac{a}{a_0}\omega_m + 2\omega_i\right) \\ \beta = \dfrac{2p}{a+b}\left(\dfrac{a}{a_0}\omega_m + 2\omega_i\right) \\ \theta(H) \text{ est l'angle des aimantations} \end{cases} \tag{11}$$

ω_m et ω_i donnent les proportions de la diffusion dépendante du spin en volume et à l'interface.
p est le rapport de la diffusion dépendante du spin sur la diffusion indépendante du spin due à la barrière de potentiel entre les matériaux magnétiques et non magnétiques.
a et b sont les épaisseurs des couches magnétiques et non magnétiques
a_0 et b_0 sont les distances entre plans atomiques des couches sus citées.

L'amplitude de la GMR est alors définie par le rapport:

$$R = \frac{\rho(H=0)-\rho(H=Hs)}{\rho((H=0))} = \frac{\rho(\theta=\pi/2)-\rho(\theta=0)}{\rho(\theta=\pi/2)} = \frac{\beta^2}{\gamma^2} \qquad (12)$$

A partir de ces équations, Zhang et al ont pu tenter de remonter aux paramètres microscopiques en ajustant des courbes expérimentales dans les multicouches Fe/Cr. Ils ont ainsi déterminé la contribution dominante de la diffusion interfaciale dans le système Fe/Cr et fixer le paramètre p à 0.55 montrant ainsi que la diffusion dépendante du spin était bien à la base de la GMR. Ces même paramètres, fixés en ajustant la dépendance de la GMR avec les épaisseurs de Cr ou de Fe, ont permis de représenter parfaitement l'amplitude de la GMR. La forme de la courbe en revanche n'était pas parfaite car l'hypothèse d'une rotation uniforme de l'aimantation se révèlait inexacte.

L'amplitude de GMR, pour une diffusion interfaciale ($\omega m=0$) ou volumique ($\omega i=0$) dominante s'écrit dans ce modèle:

$$R(\omega_m=0) = \frac{4p^2}{(1+p^2)} = \left(\frac{\alpha-1}{\alpha+1}\right)^2 .\text{et}.R(\omega_i=0) = \frac{4p^2}{\left(1+p^2+\frac{b}{a}\right)^2}$$

où p est relié au terme d'assymétrie des résistivités au niveau de Fermi par $p=(\sqrt{\alpha}-1)/(\sqrt{\alpha}+1)$. On retrouve avec $\omega m=0$ la même formule que celle obtenue avec un réseau de résistances.

- Quelques valeurs remarquables.

Un grand nombre de systèmes ont été envisagés les années suivantes, pour obtenir les plus fortes amplitudes possibles. Le tableau I.1 recense quelques exemples de multicouches et leurs amplitudes de GMR.

La lecture de ce tableau montre que l'amplitude de la GMR peut varier considérablement d'un système à l'autre, puisqu'on trouve un rapport de 60 entre le système Co/Cr et Fe/Cr. On remarque d'ailleurs que l'amplitude est caractéristique du couple métal magnétique/métal non magnétique et non de chaque matériau. En effet, les systèmes Fe/Cr et Co/Cu présentent des amplitudes très élevées alors que Fe/Cu et Co/Cr, qui sont les systèmes croisés ont pour leur part les plus petites valeurs. On peut faire le même constat avec les systèmes NiFe/Cu et NiFe/Cr mais dans une moindre mesure. Dans les systèmes à base d'Ag l'amplitude est souvent élevée sauf pour Fe/Ag. Les raisons de ces écarts sont multiples; car il faut savoir pour chaque couple si la diffusion dominante est interfaciale ou en volume, puis considérer l'effet de la rugosité, qui peut être favorable ou néfaste. L'apariement de certains couples aboutit à une mauvaise combinaison, d'où la faible GMR, c'est peut être le cas de Fe/Cu et Co/Cr. Il

apparait aussi que de forts écarts de paramètres de maille (Fe/Cu) produisent une zone de relaxation, responsable d'une forte diffusion qui réduit le lpm.

Multicouches	Amplitude	Hsat	Préparation	Référence
Co 15Å/Cr 4Å	2.5%	6kOe	PC	22
Fe/Cu	13%		PC	43
NiFe/Cu	25%	15kOe	PC	44
$Ni_{81}Fe_{19}$ 20Å/Ag 10Å	50%	1kOe	PC	45
Fe 30Å/Cr 9Å	92%	20kOe	EJM	24
$Co_{70}Fe_{30}$ 4Å/Ag 15Å	100%	3kOe	PC	46
Co 8Å/Cu 9Å	115%	13kOe	PC	47
Fe 14Å/Cr 8Å	150%	20kOe	PC	48

Tableau I.1: Amplitude de GMR pour quelques multicouches à 4.2K. Hsat représente le champ à appliquer pour obtenir la plus grande variation de la résistivité. PC=Pulvérisation cathodique, EJM=Epitaxie par Jets Moléculaires.

II.B.2. Autres systèmes présentants de la GMR

La présence d'un couplage antiferromagnétique entre les couches magnétiques n'est pas nécessaire pour voir apparaitre la GMR, il suffit que les aimantations des entités magnétiques ne soient pas alignés. Appliquant ce principe, plusieurs nouveaux systèmes ont alors fait leur apparition.

Tout d'abord les systèmes, dits **« spin valves »**, dans lesquels une des couches magnétiques est piégée par couplage, alors que l'autre suffisemment découplée reste libre de tourner rapidement sous l'influence du champ. Dans le système FeMn/FeNi/Cu/FeNi[49], la couche de FeMn, antiferromagnétique, assure le piégeage de la couche adjacente de FeNi. La figure I.7 illustre le comportement de ce système sous champ. La couche de FeNi libre tourne rapidement lorsque le champ devient positif, provoquant un alignement antiparallèle des aimantations. La résistivité subit de ce fait un fort accroissement, puis lorsque le champ est suffisemment fort pour vaincre le couplage qui lie la couche de FeNi au FeMn, la deuxième couche se retourne, provoquant la chute de la résistivité. Dans ce type de système, la courbe obtenue n'est pas réversible en champ, car le couplage est unidirectionnel. Un autre système à peu près équivalent au niveau du comportement, consiste à utiliser deux matériaux ferromagnétiques non couplés mais de coercitivités différentes. Par exemple le système NiFe/Cu/Co[50], dans lequel le Co a une coercitivité nettement plus forte que le FeNi, se

comporte de la même manière que le système valve de spin présenté au dessus, avec toutefois la symétrie en champ habituelle.

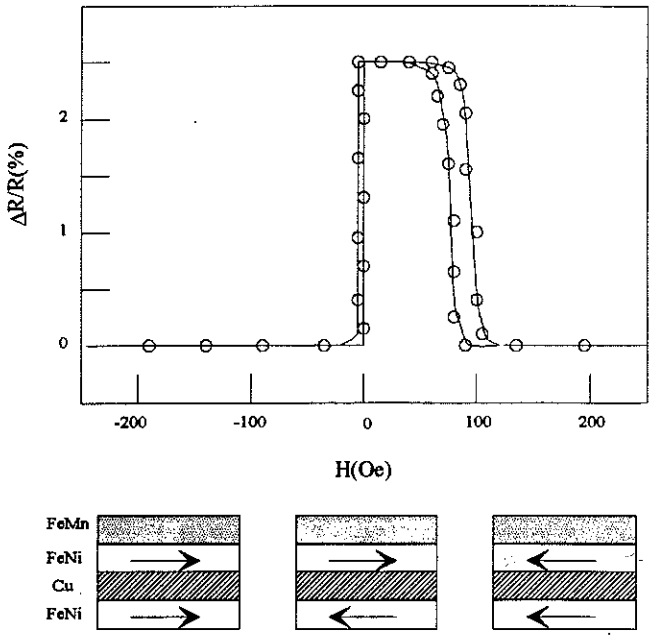


Figure I.7: Magnétorésistance dans un système valve de spin FeMn/FeNi/Cu/FeNi. Les schémas au dessous montrent les configurations des aimantations pour les différents champs.

En 1992 une équipe américaine[51] donna la preuve que la GMR pouvait exister non seulement dans des systèmes non couplés, mais aussi dans des systèmes où les aimantations sont orientées de façon complétement aléatoire. Les **systèmes granulaires** sont synthétisés par une co-déposition de matériaux magnétiques et non magnétiques. Ils se présentent sous la forme de grains magnétiques, dont la taille varie de l'atome isolé à la centaine d'atomes, noyés dans une matrice non magnétique. Selon la concentration de l'espèce magnétique on peut observer des comportements en MR très différents . La figure I.8 l'illustre pour des alliages de Co_xCu_{1-x}. Cet alliage préparé à température ambiante est formé principalement d'une solution solide métastable où les atomes de Co et Cu sont intimement mélangés. Dans certaines zones cependant de petits précipités magnétiques riches en Co ont pu apparaître. Pour la concentration la plus forte (x=28% at) les précipités de Co doivent être assez nombreux mais la solution solide riche en Co, dans laquelle baigne ces grains étant magnétique tous ces précipités se trouvent couplés ferromagnétiquement et ne participent pas à la GMR. L'amplitude mesurée est donc très faible.

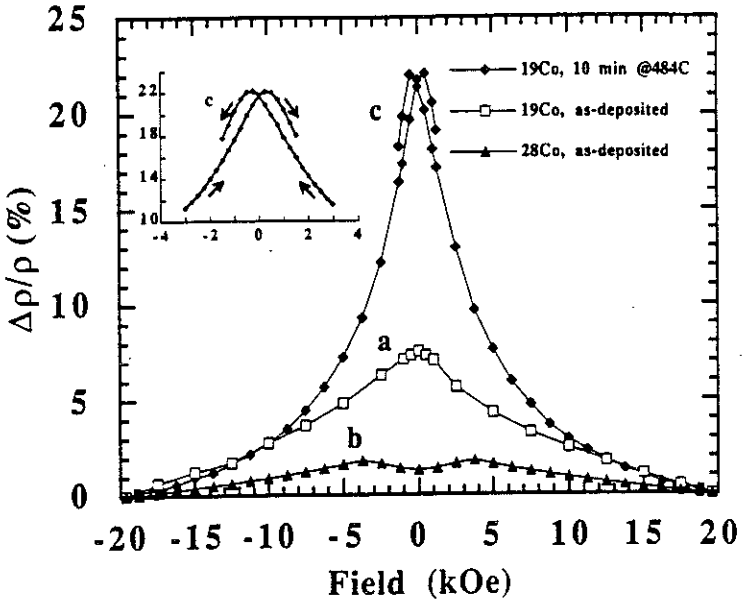


Figure I.8:Dépendance en champ de la magnéto-résistance dans des alliages Co_xCu_{1-x} Les courbes a et b sont données pour des concentrations de Co x=19% at. et 28% at. mesurées à 100K. La courbe c correspond à l'échantillon a recuit à 484°C et mesuré à 10K. d'après [51]

L'échantillon le plus faiblement concentré (x=19% at) semble quant à lui posséder lui aussi des grains magnétiques mais cette fois isolés par une matrice non magnétique. Leur aimantation est complétement aléatoire du fait de leur isolement Ceux ci étant toutefois peu nombreux, la GMR observée est assez réduite, de l'ordre de 8% dans 20kOe. Le phénomène le plus intéressant apparait aprés recuit des échantillons, lorsque la solution solide s'est dissociée, permettant la formation de nombreux précipités riches en Co et de taille plus importante. La GMR est alors nettement plus importante puisqu'elle atteint 22% dans 20kOe. Dans tous les cas, les grains les plus petits ne parviennent pas à saturation avec le champ magnétique, ils gardent un comportement superparamagnétique, responsable des longues trainées en champs forts.

Ces nouveaux matériaux par leurs propriétés de GMR et leur simplicité de fabrication par rapport aux multicouches ont suscité un très grand intérêt de la part des chercheurs pour de potentiels développement technologiques, mais aucun système ne semble pouvoir surmonter le problème de saturation des petits grains. L'amplitude de GMR dans ces systèmes à orientation aléatoire est tout de même très élevée puisqu'elle peut atteindre 92% à 4.2K[52] dans l'alliage $(Co_{65}Fe_{35})_xAg_{1-x}$.

Quelques modèles théoriques[53 54], basés sur les même hypothèses que dans les multicouches, ont tenté d'expliquer l'amplitude de la GMR dans les systèmes granulaires, sans pour autant pouvoir corréler les expériences. La distribution de taille et surtout la présence de diffusion spin-flip, négligeable dans les multicouches, rendent la tache bien plus ardue, et pour l'instant relativement vaine.

CONCLUSION: Quel système pour l'avenir des têtes de lecture ?

Dans ce chapitre nous avons présenté les quatre principaux candidats pour la réalisation de têtes de lecture magnéto-résistives. Les **systèmes à AMR**, les plus utilisés à ce jour, ont montré la possibilité, moyennant quelques solutions technologiques, d'être utilisés comme capteur de champ. Cependant la miniaturisation toujours croissante des systèmes de lecture pour les médias à très haute densité d'information, impose des épaisseurs des couches fortement réduites (~ 300Å), pour lesquelles la variation de résistivité tombe rapidement au dessous de 2%, ce qui les élimine pour ce genre d'application.

La solution de l'**effet Hall planaire**, même si elle est séduisante par sa sensibilité remarquable et la taille réduite des échantillons, est inadaptée au milieu industriel à cause de sa fabrication par EJM, couteuse, longue et difficile.

Les **systèmes à GMR**, qui possédent toutes les qualités requises au niveau de la facilité de fabrication (Pulvérisation cathodique), de la possibilité de miniaturisation, ou de la forte amplitude de MR, peinent par leur sensibilité réduite à cause des champs de saturation souvent très élevés. Malgré tout, nous verrons qu'il existe des systèmes où le champ de saturation peut être fortement abaissé, permettant une sensibilité très compétitive pour des applications.

Les **systèmes granulaires**, aujourd'hui handicapés par la présence des grains superparamagnétiques, peuvent espérer sous une autre forme rivaliser avec les multicouches, comme nous le verrons dans la suite.

La solution pourrait donc venir des **systèmes à valve de spin**, qui présentent les plus fortes sensibilités, et tous les avantages des multicouches. Cependant certaines étapes technologiques impliquent des recuits à 250°C qui peuvent se révèler néfastes en modifiant la structure multicouche ou en détruisant le couplage d'anisotropie d'échange.
Aucun système ne s'imposant réellement, l'avenir viendra peut être de systèmes hybrides, qui regrouperont les qualités des divers systèmes, en réduisant leurs inconvénients.

BIBLIOGRAPHIE

[1] G.K.White, S.B.Woods, Phil.Mag.,**1**,846,(1956),101
[2] W.Thomson, Proc.Roy.Soc., Vol **8**, (1857), 546
[3] R.Hunt, IEEE Trans.Magn., **MAG 7**, (1971), 150
[4] R.L.White, IEEE Trans.Magn., **MAG 30**, (1994), 346
[5] S.Jin, T.H.Tiefel, M.McCormack, R.A.Fastnacht, R.Ramesh, L.H.Chen, Science, **264**, (1994), 413
[6] T.R.McGuire, R.I.Potter, IEEE Trans.Magn., **MAG 11**, (1975), 1018
[7] A.Fert,R.Asomoza, D.H.Sanchez, D.Spanjaard, A.Friederich, Phys.Rev.B, **16**, (1977), 5040
[8] N.F.Mott Proc.Phys.Soc., **47**, (1935), 571
[9] A.Fert, J.A.Campbell, J.Phys.F: Met.Phys., **6**, (1976), 849
[10] J.A.Campbell, A.Fert, O.Jacoul, J.Phys. C: Solid State Phys. (Met. Phys. Suppl.), **1**, (1970), S95
[11] J.W.F.Dorleijn, A.R.Miedema, J.Phys.F, Met.Phys.,**5**, (1975), 1543
[12] P.Muth, V.Christoph, J.Phys.F:Met.Phys., **11**, (1981), 2119
[13] K.Schwarz, P.Mohn, P.Blaha, J.Kübler, J.Phys.F: Met.Phys., **14**, (1984), 2659
[14] D.A.Thompson, L.T.Romankiw, A.F.Mayadas, IEEE Trans.Magn., **MAG.11**, (1975), 1039
[15] A.Schuhl,F.Nguyen Van Dau, J.R.Childress, Appl.Phys.Lett., **66**, (1995), 2751
[16] U.Gradmann, J.Magn.Magn.Mater., **54-57**, (1986), 733
[17] U.Gradmann, H.J.Elmers, M.Przybylski, J.Phys. (Paris), **49**, (1989), C8-1665
[18] H.J.G.Draaisma, W.J.M.de Jonge, F.J.A.den Broeder, J.Magn.Magn.Mater., **66**, (1987), 351
[19] M.Maurer, J.C.Ousset,M.F.Ravet, M.Piecuch, Europhys.Lett., **9**, (1989),803
[20] Y.Yafet, J.Appl.Phys.,**61**, (1987), 4058
[21] P.Grünberg,R.Schreiber, Y.Pang, M.B.Brodsky,H.Sowers, Phys.Rev.Lett., **57**, (1986), 2442
[22] C.Carbone, S.F.Alvarado, Phys.Rev.B, **36**, (1987), 2433
[23] S.S.P.Parkin,N.More, K.P.Roche, Phys.Rev.Lett., **64**, (1990), 2304
[24] J.Smits, Physics World, Nov 1992, 48
[25] P.Bruno, C.Chappert, Phys.Rev.Lett., **67**, (1991), 1602; **67**, (1991), 2592(E); Phys.Rev.B, **46**, (1992), 261
[26] V.Grolier, D.Renard, B.Bartenlian, P.Beauvillain, C.Chappert, C.Dupas, J.Ferré, M.Galtier, E.Kolb, M.Mulloy, J.P.Renard, P.Veillet, Phys.Rev.Lett., **71**, (1993), 3023
[27] M.N.Baibich, J.M.Broto, A.Fert, F.Ngyuen Van Dau, F.Petroff, P.Eitenne, G.Creuzet, A.Friederich, J.Chazelas, Phys.Rev.Lett., **61**, (1988), 2472
[28] B.L.Johnson, R.E.Camley, Phys.Rev.B, **44**, (1991), 9997
[29] P.M.Levy, S.Zhang, A.Fert, Phys.Rev.Lett., **65**, (1990), 1643
[30] B.Dieny, Europhys.Lett., **17**, (1992), 261
[31] D.M.Edwards, J.Mathon, R.B.Muniz, IEEE Trans.Magn., **MAG 27**, (1991), 3548
[32] S.S.P.Parkin, Phys.Rev.lett., **71**, (1993), 1641
[33] E.E.Fullerton, D.M.Kelly, J.Guimpel, I.K.Schuller, Phys.Rev.Lett., **68**, (1992), 859
[34] T.C.Huang, J.P.Nozières, V.S.Speriosu, B.A.Gurney, H.Lefakis, Appl.Phys.Lett., **62**, (1993), 1478
[35] R.E.Camley, J.Barnas, Phys.Rev.Lett., **63**, (1989), 664
[36] K.Fuchs, Proc.Philos.Camb.Soc., **34**, (1938), 100
[37] E.H.Sondheimer, Adv.Phys., **1**, (1952), 1
[38] A.Barthélémy, A.Fert, Phys.Rev.B, **43**, (1991), 13124
[39] P.M.Levy, S.Zhang, A.Fert, Phys.Rev.Lett., **65**, (1990), 1643

[40] B.L.Johnson, R.E.Camley, Phys.Rev.B, **44**, (1991), 9997; R.E.Camley, R.L.Stamps, J.Phys.:Condens.Matter, **5**, (1993), 3727
[41] S.Zhang, P.M.Levy,A.Fert, Phys.Rev.B, **45**, (1992), 8689
[42] Z.Tesanovic, M.V.Jaric, S.Maekawa, Phys.Rev.Lett., **57**, (1986), 2760
[43] F.Petroff,A.Barthelemy, D.H.Mosca, D.K.Lottis, A.Fert, P.A.Schroeder, W.P.Pratt, R.Loloee, S.Lequien, Phys.Rev.B, **44**, (1991), 5355
[44] S.S.P.Parkin, Appl.Phys.Lett., **60**, (1992), 512
[45] B.Rodmacq, G.Palumbo, PH.Gerard, J.Magn.Magn.Mater., **118**, (1993), L11
[46] O.Redon, J.Pierre, B.Rodmacq, B.Dieny, B.Mevel, proceedings of ICMFS 94,Dusseldorf, 28/8-2/9/94.
[47] D.H.Mosca, F.Petroff, A.Fert, P.A.Schroeder, W.P.Pratt, R.Loloee, J.Magn.Magn.Mater., **94**, (1991), L1
[48] E.Fullerton, M.J.Conover, J.E.Mattson, C.H.Sowers, S.D.Bader, Appl.Phys.lett., **63**, (1993), 1699
[49] B.Dieny, V.S.Speriosu,S.S.P.Parkin, B.A.Gurney, D.R.Wilhoit, D.Mauri, Phys.Rev.B, **43**, (1991), 1297
[50] D.Lottis, A.Fert, R.Morel, L.G.Pereira, J.Appl.Phys., **73**, (1993), 5515.
[51] A.E.Berkowitz, J.R.Mitchell, M.J.Carey, A.P.Young, S.Zhang, F.E.Spada, F.T.Parker, A.Hutten, G.Thomas, Phys.Rev.Lett., **68**, (1992), 3745
[52] C.Bellouard, B.georges, G.Marchal, J.Phys.: Condens.Matter, **6**, (1994), 7239
[53] S.Zhang, Appl.Phys.lett., **61**, (1992), 1855
[54] S.Zhang, P.M.Levy, J.Appl.Phys., **73**, (1993), 5315

Références de livres ou d'articles généraux non cités:

A.Fert, Materials Science Forum, **Vol 59 & 60**, (1990), 439-480
P.L.Rossiter, « The electrical resistivity of metals and alloys », Cambridge University Press
J.Mathon, J.Magn.Magn.Mater., **100**, (1991), 527
P.M.Levy, Solid State Physics, **47**, (1994), 367

PARTIE B

Les systèmes multicouches

CHAPITRE II

FABRICATION DE COUCHES MINCES PAR PULVERISATION CATHODIQUE MAGNETRON

INTRODUCTION.....41

I. PRINCIPE DES PULVERISATIONS CATHODIQUES.....42
I.A. Les mécanismes de P.C.....42
I.B. Pulvérisation R.F.....44
I.C. Pulvérisation diode magnétron.....45

II. FABRICATION DE COUCHES MINCES PAR PULVERISATION TRIODE.....39
II.A. Description de la machine de pulvérisation.....39
II.B. Elaboration des échantillons.....40

CONCLUSION.....41

INTRODUCTION: Les différents modes de dépôt de films minces

Les méthodes de dépôt de couches minces se répartissent en deux catégories: Les processus physiques de dépôt par évaporation (Physical Vapor Deposition ou PVD) et les processus chimiques (Chemical Vapor deposition ou CVD); le choix de l'une au l'autre technique étant lié à la nature du matériau à déposer.

*S'il est volatil, il peut être envoyé dans la chambre de dépôt sous phase vapeur, où il réagira thermiquement ou avec d'autres gaz au niveau du substrat, pour former une réaction qui assurera le dépôt du composé de façon atomique sur le substrat (CVD). Certaines techniques plus évoluées font intervenir un plasma froid ou un faisceau laser pour assister la CVD; ils facilitent l'initiation des réactions chimiques, et ainsi permettent d'abaisser la température du substrat, ce qui est nécessaire au dépôt de composés comme les polymères.

*Dans le cas contraire il sera évaporé à partir de sa phase solide, par diverses techniques, et sera projeté de façon atomique sur un substrat convenablement placé dans la direction d'éjection (PVD). La pulvérisation cathodique rapide et souple semblait la plus adaptée pour la fabrication des multicouches. La Figure II.1 résume les principales techniques de dépôt inhérentes à ces deux catégories:

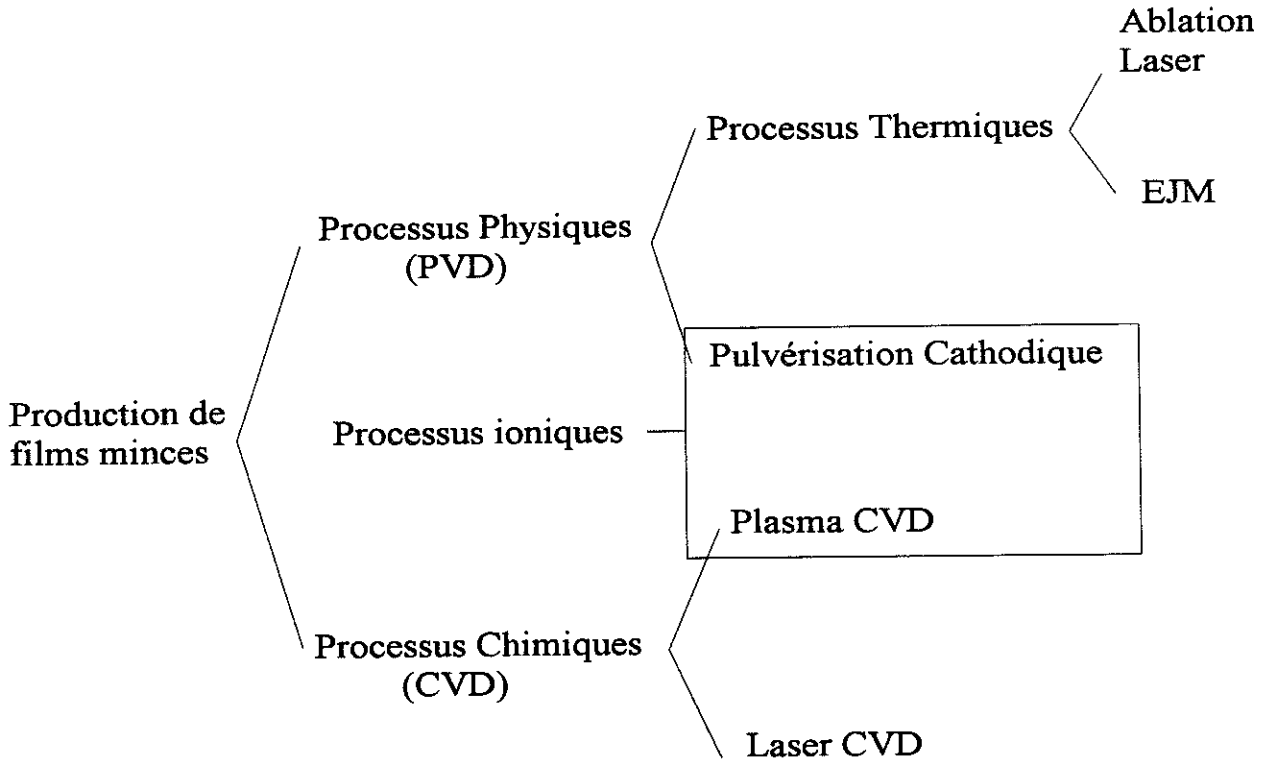


Figure II.1: synopsis des principales techniques de fabrication de couches minces.

Toutes les couches étudiées dans cette thèse ont été fabriquées au **Département de Recherche Fondamentale du C.E.N.G** par **A.Pierrot** et **B.Rodmacq**.

I. Principe des pulvérisations cathodiques (PC)[1,2,3].

La physique de la PC est intimement liée à celle des **décharges plasmas**. En effet, lorsqu'on introduit un gaz neutre dans une chambre où règne un fort champ électrique, on observe rapidement l'initiation d'un plasma, i.e. d'une ionisation « lumineuse » des atomes du gaz.
Ce plasma est appelé **plasma froid**, car seuls les électrons sont sensibles au champ électrique du fait de leur faible masse, et provoquent des collisions ionisantes. Les autres particules (majoritaires) comme les ions, les molécules ou les atomes constituent un bain quasi immobile à température ambiante.
La mobilité des électrons étant nettement supérieure à celle des ions, les courants qui s'écoulent au niveau de chaque électrode sont très dissymétriques; il apparait donc autour des électrodes des zones de charges d'espaces (CE) où l'une des deux espèces est fortement exclue. Au niveau de la cathode cette CE positive va provoquer l'accélération des ions du gaz, qui vont bombarder la cible et arracher des atomes qui se déposeront sur le substrat placé en vis à vis.

Le point sensible dans les phénomènes de PC est d'entretenir le plasma. Pour cela il est important de maintenir un très grand nombre d'**électrons primaires** (responsables des ionisations). Dans les systèmes diodes, les plus simples, on est obligé d'utiliser une pression de gaz assez élevée afin de conserver un taux d'ionisation suffisant, ce qui provoque une pollution conséquente des substrats.
Des solutions technologiques, comme la PC triode qui utilise une source d'électrons indépendante, la PC Radio Fréquence ou l'effet magnétron, que nous verrons plus loin permettent de réduire notablement les pressions des gaz, et ainsi de limiter la pollution des substrats.

I.A. Les mécanismes de PC

Le processus de pulvérisation est quantifié en terme de **rendement**, défini par le nombre d'atomes de cible éjectés par particule incidente. Ce rendement dépend des espèces de la cible, des espèces bombardantes, de leurs énergies et de leur angle d'incidence. Les meilleurs rendements sont obtenus lorsque la masse des particules incidentes est du même ordre de grandeur que celle des particules cibles. L'utilisation de gaz inerte évitant de plus des réactions chimiques au niveau de la cible ou du substrat, l'Argon est très souvent employé pour sa compatibilité au niveau des masses et son faible coût.

Selon les énergies des ions Ar^+, les processus de pulvérisation peuvent être multiples, comme le recense la figure II.2.

Tout d'abord il existe un **seuil d'énergie de pulvérisation** des atomes cibles d'environ 30 eV, les ions Ar^+ doivent donc posséder une énergie cinétique suffisante. Dans la majorité des cas leur énergie cinétique varie entre 100 et 1000 eV, donc bien au dessus du seuil de pulvérisation. Dans le groupe du Fe par exemple, les rendements sont respectivement de 0.76, 0.81, 0.95 atome/ions pour le Fe, le Co et le Ni, dans le cas d'ions Ar^+ de 300eV.

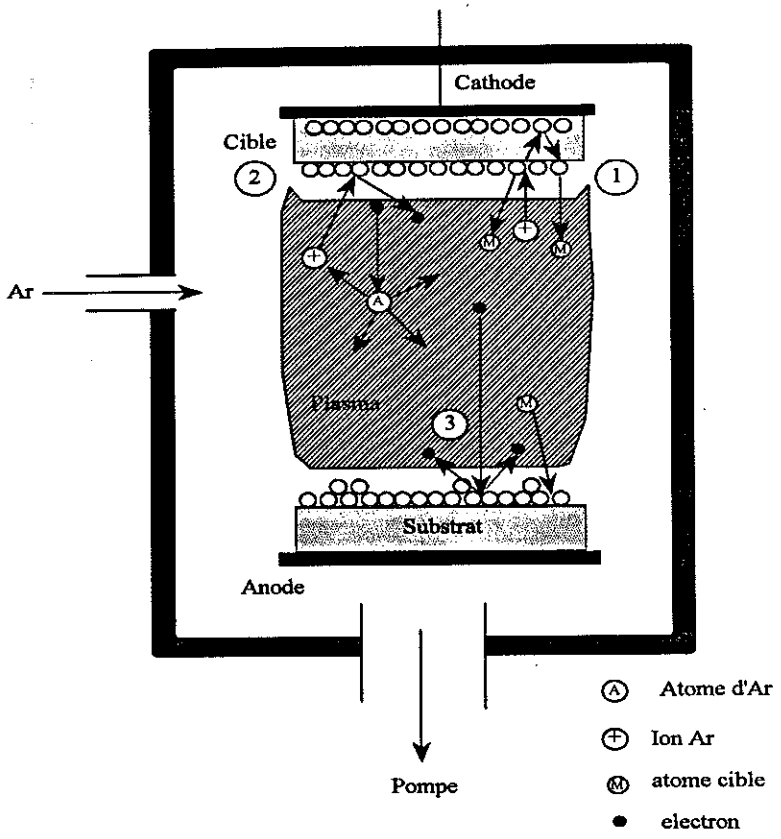


Figure II.2: mécanismes de pulvérisation dans un système diode.

Lorsque un ion hautement énergétique vient frapper la cible sous incidence normale, il se produit une séquence de collision qui peut aboutir à l'éjection d'un ou plusieurs atomes cibles. En effet, l'ion incident frappe généralement deux atomes du réseau presque simultanément; la particule frappée de biais reçoit une composante du moment cinétique et provoque l'éjection d'un ou plusieurs de ses voisins. L'atome frappé directement s'enfonce quant à lui dans le cristal et s'il est réfléchi vient provoquer l'éjection d'un atome supplémentaire en le frappant par l'arrière. Ce mécanisme est indicé (1) sur la Figure. Compte tenu de la grande énergie des particules incidentes, il existe une probabilité non négligeable que les atomes arrachés presque simultanément s'agglomérent en clusters, au lieu de rester à l'état atomique.

Ces clusters, s'ils ne sont pas décomposés dans le plasma peuvent engendrer une croissance 3D indésirable au niveau du substrat.
Les ions Ar^+ de plus faible énergie peuvent aussi dans certains cas (1/10) produire, en frappant la cible, des électrons secondaires, qui sont accélérés dans la zone de CE et viennent participer à l'ionisation du plasma (indice 2).
Enfin plus rarement (1/100) il y a production d'ions lors de la collision. Les ions positifs ne peuvent échapper à la zone de CE positive, par contre les ions négatifs sont pour leur part accélérés jusqu'à de fortes énergies et peuvent provoquer des phénomènes de re-pulvérisation au niveau du substrat. De même des électrons qui ne provoquent pas d'ionisation dans le plasma viennent frapper le substrat en provoquant l'émission d'électrons secondaires (indice 3).

I.B. Pulvérisation RF

Le principe de la **pulvérisation RF** a les même traits que la précédente, la seule différence provenant de la tension appliquée entre les électrodes qui oscille désormais à une fréquence de quelques Mhz (13.56 MHz).
A cette fréquence seuls les électrons sont capables de suivre les variations temporelles de la tension. On peut considérer alors le plasma comme une mer d'électrons oscillante sur un fond stationnaire d'ions. Lorsque le nuage électronique découvre une partie des ions, il apparait une zone de CE positive dans laquelle les ions sont accélérés et viennent bombarder les surfaces des électrodes. Dans un tel modèle les ions devraient bombarder alternativement la cible et le substrat, annulant ainsi tout effet de pulvérisation. Cependant il ne faut pas oublier que la charge qui traverse une électrode sur un cycle RF doit être nulle; or compte tenu de la différence de mobilité entre les ions et les électrons, il se dégage un excés de courant électronique. Le système réagit naturellement en faisant apparaître une tension continue négative qui décale la porteuse RF pour égaliser les courants. Les électrodes se comportent donc la majeure partie du temps comme des cathodes et le reste du temps comme des anodes. Du fait de leur inertie les ions ne vont ressentir que l'effet de la tension continue qui est apparue et vont être accélérés dans cette ddp pour bombarder uniquement la cible.

Les principaux avantages de cette technique, tiennent à la capacité de pulvériser des isolants, mais aussi de faire du dépôt de métaux à très basse pression car le caractère oscillant réduit les pertes d'électrons primaires et surtout augmente le volume d'ionisation permettant d'obtenir de forts taux de pulvérisation.

I.C. La pulvérisation diode magnétron.

La faible production et la perte d'électrons primaires étant les principaux handicaps des systèmes de pulvérisation à courants continus, l'adjonction d'un champ magnétique peut permettre de pallier ces deux défauts grâce à un confinement électronique du plasma. En effet, les trajectoires électroniques sous l'action conjuguée des champs électriques et magnétiques vont s'enrouler selon la direction définie par $\vec{E} \wedge \vec{B}$. Cet enroulement va augmenter d'une part le libre parcourt, ce qui améliorera considérablement le taux d'ionisation, et d'autre part évitera la perte des électrons primaires, rendant ainsi possible des dépôts à faible pression d'Ar. On peut atteindre des pressions 20 fois plus faibles que la diode classique grâce à l'effet magnétron.
Le confinement du plama autour de la cathode présente en outre l'avantage de limiter fortement les risques de contaminations des substrats.

Un système de pulvérisation diode magnétron à courant continu équipe le laboratoire du DRF pour le dépôt de couches minces de métaux purs et d'alliages. La géométrie du système magnetron est représentée par la figure II.3. Un aimant concentrique placé sous les cibles assure la production du champ magnétique, dont les lignes de champs transversales au champ électrique confinent le plasma en un anneau au niveau de la cible. La pression d'Ar est de l'ordre de 2.10^{-3} torr et la distance cible/substrat atteint 9cm.

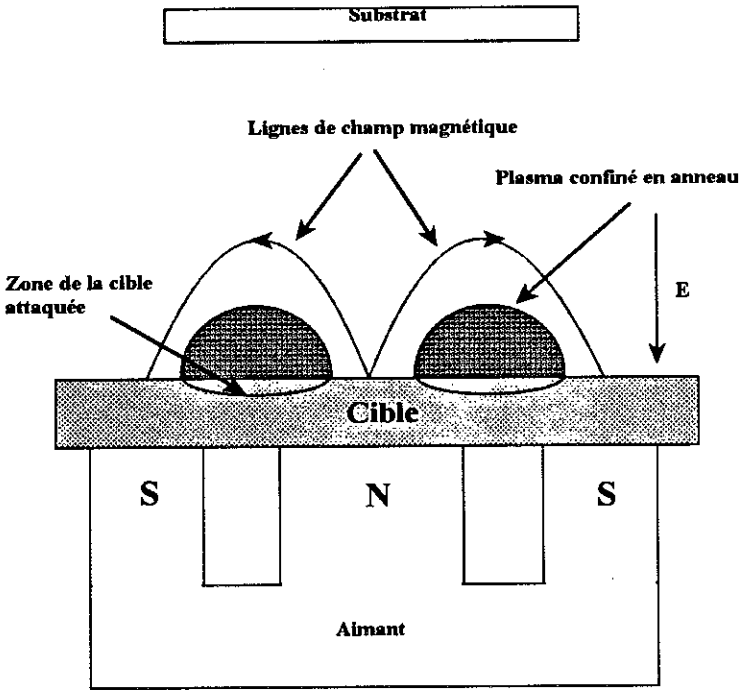


Figure II.3: Schéma de l'effet magnétron utilisé dans le bati de pulvérisation diode.

II. FABRICATION DE COUCHES MINCES PAR PULVERISATION TRIODE.

II.A. Description de la machine de pulvérisation.

Pour l'élaboration de nos couches nous avons utilisé le dernier type de dispositif, la pulvérisation triode. Dans cette configuration on utilise une source d'électrons primaires indépendante (cathode chaude à 2500°C) pour augmenter l'ionisation du gaz et maintenir une vitesse de pulvérisation constante à basse pression d'Ar. Le plasma généré indépendamment de l'ensemble cible/substrat entre la cathode thermo-ionique et une anode cylindrique est ensuite accéléré par une tension appliquée sous les cibles. Un effet de confinement du plasma de type magnétron est assuré par de petites bobines placées sous les cibles. Cette technique permet des dépôts à basse pression de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-3} mbar.
La géométrie de l'ensemble cible/substrat, hors dispositif magnétron est représentée sur la figure II.4.

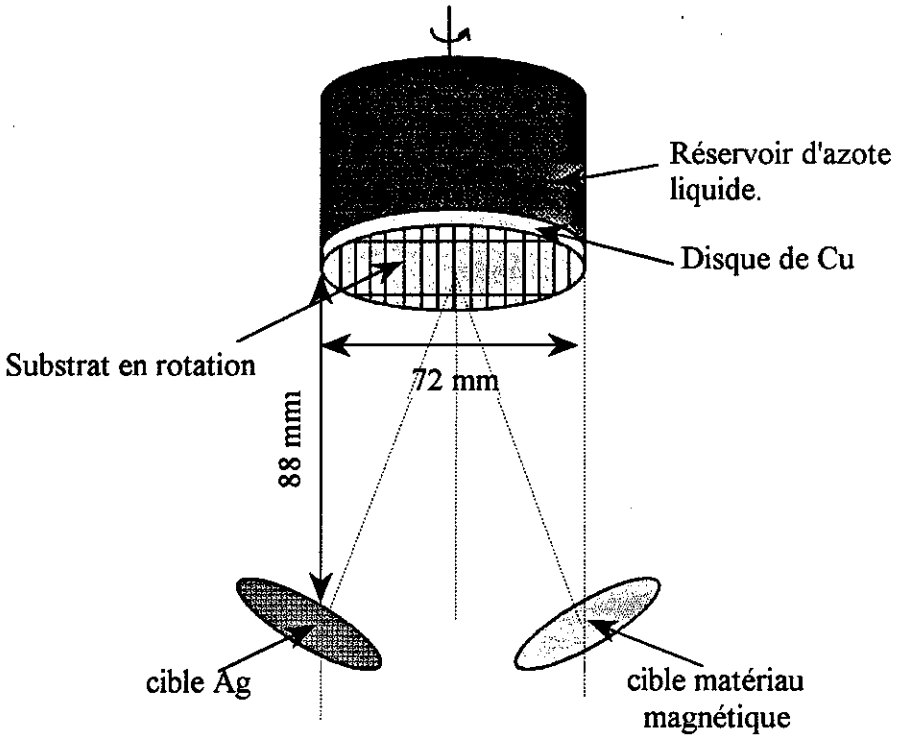


Figure II.4: Géométrie de la machine de pulvérisation magnétron triode à cibles convergentes et rotation de substrat.

Il est constitué de deux sous ensembles:

-Un plateau porte-substrat qui offre la possibilité de dépôts avec ou sans rotation, permet de créer différents gradients d'épaisseurs pour les multicouches ou de concentrations pour les systèmes granulaires.

Il est aussi doté d'un réservoir d'azote liquide et d'un disque de Cu, qui assure un bon contact thermique avec les substrats, pour les dépôts à basse température. Cette option a été très utile pour le dépôt des couches non magnétiques (Ag) qui présentaient une forte coalescence (croissance en îlots) à température ambiante.

- Enfin la géométrie convergente des cibles a été étudiée pour un dépôt simultané d'un grand nombre de couches, dans des conditions expérimentales rigoureusement identiques. On est ainsi assuré que les phénomènes qui apparaissent ne sont pas le fruit de fluctuations de paramètres de dépôt. Bien sûr cette géométrie participe au même titre que le porte-substrat à la création de gradients.

II.B. Elaboration des échantillons.

Les échantillons sont élaborés sur des substrats amorphes de SiO_2. L'épaisseur d'oxyde qui semblait au départ peu déterminante s'est en fait avérée très importante, car une trop grande planéité nuisait à toute adhésion des couches. Pour des épaisseurs de 1000Å de SiO_2 les échantillons en sortie de bâti se sont effrités sous forme de paillettes! Une épaisseur de 5000Å présentant une bien moindre qualité de surface a permis de très bons dépôts.

L'étalonnage des vitesses de dépôt des différents matériaux constitutifs de la multicouches s'effectue selon le processus suivant. On commence par pulvériser pendant 30min le matériau sur un substrat de verre où l'on a préalablement collé une fine lamelle de scotch. Les paramètres de courant et de pression sont définis pour avoir des vitesses raisonnables, mais ne sont pas encore affinés. En retirant la lamelle de scotch et en mesurant l'épaisseur déposée au profilomètre (Figure II.5), on remonte aisément à la vitesse de dépôt. On affine ensuite les paramètres pour obtenir les vitesses désirées. Les cibles étant alimentées par des sources de courant stabilisées, ces étalonnages restent valables lors des pulvérisations suivantes et ne dérivent que très lentement après plusieurs heures d'utilisation.

Les épaisseurs des couches déposées sont controlées par les tensions appliquées sous les cibles (tensions discrètes de 300, 600,1000 ou 1500V) et par une mesure in-situ de l'épaisseur totale par quartz vibrant. Lorsque l'épaisseur d'une couche est atteinte le quartz commande l'inversion des tensions sous les cibles pour déposer la couche suivante. La tension nominale pour la cible magnétique est fixée à 300V afin d'avoir la vitesse de dépôt la plus lente ($\cong$1Å/s); la tension de la cible non magnétique, ajustée de manière plus fine grâce à un variac, est réglée à environ 136V pour avoir la même vitesse de dépôt que les couches magnétiques. Après sortie du bâti les épaisseurs individuelles de chaque couche sont vérifiées par Rayons X.

Les couches sont préparées sur des disques de 4 pouces soit en rotation ou sans rotation selon le degré de gradient désiré. La surface protectrice est une couche d'Ag d'une dizaine

d'Angströms qui évite toute oxydation des couches magnétiques, qui pourrait être néfaste aux propriétés. Ces disques sont ensuite découpés en lamelles de 3mmX26mm perpendiculairement à la ligne joignant les deux cibles, afin de limiter le gradient dans les échantillons (cf Fig II.4). En effet des expériences préliminaires ont montré que dans la direction perpendiculaire à cette ligne, le gradient était nettement plus faible que dans l'autre direction. On considère alors que chaque échantillon présente des épaisseurs de couches homogènes sur toute la surface.

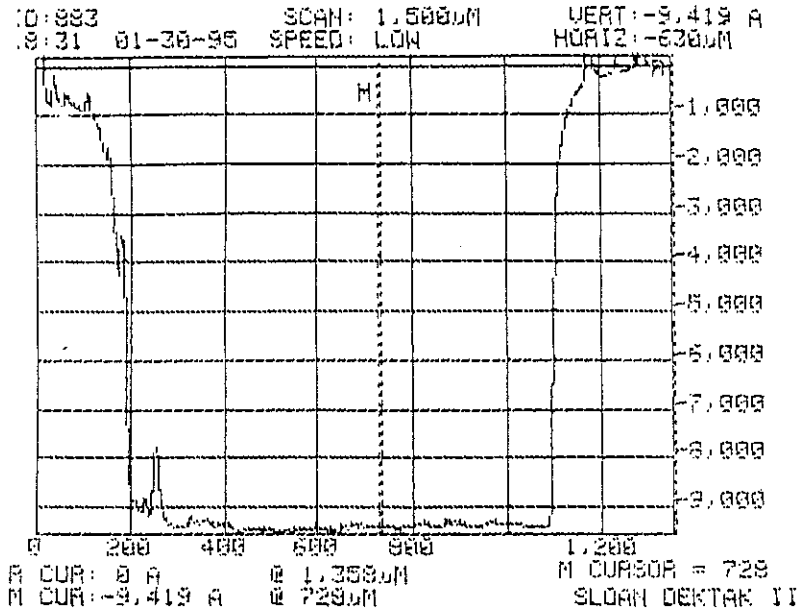


Figure II.5: Exemple de courbe obtenue au profilomètre. La méthode du scotch, même si elle semble quelque peu empirique, donne des résultats très satisfaisants, car le profil très abrupt et très net permet un bon calcul de l'épaisseur déposée.

CONCLUSION

Grâce à la PC triode et à la géométrie particulière des cibles, il a été possible de fabriquer des disques dont le gradient d'épaisseur de la couche non magnétique permettait de couvrir tout le premier pic de couplage AF. Les différences de propriétés magnétiques des échantillons ne pouvaient donc pas être imputables à des conditions de dépôt différentes, ce qui est un avantage indéniable pour une étude systèmatique.

Le second avantage de la PC triode est qu'elle est couramment utilisé dans l'industrie, ce qui a permis de faire facilement un transfert technologique avec le LETI pour le développement de capteurs.

Enfin la PC RF a été utile, comme nous le verrons dans un des chapitre suivant, pour fabriquer des couches magnétiques d'une plus grande douceur que la PC triode, permettant le développement de capteurs à haute sensibilité.

BIBLIOGRAPHIE

[1] R.F.Bunshah et al, Deposition technologies for films and coatings, Noyes publications, (1982).
[2] K.Wasa, S.Hayakawa, Handbook of sputter deposition technology, Noyes publications, (1992)
[3] L.I.Maissel, R.Glang, Handbook of thin film technology, McGraw Hill Book Company, (1970)

INTRODUCTION

Les systèmes à fortes amplitudes de GMR comme Fe/Cr ou Co/Cu ont des **sensibilités** très limitées à cause des grandes valeurs des champs de saturation. Dans les meilleurs cas elles atteignent **0.017%/Oe** dans Fe(20Å)/Cr(14Å)[1] et **0.04%/Oe** dans Co(10Å)/Cu(19.1Å)[2] à 4.2K; ce qui est nettement trop faible pour un développement technologique.
La valeur des champs de saturation dans ces systèmes artificiels est liée aux **interactions indirectes** entre couches magnétiques qu'il faut surmonter pour aligner les aimantations. La force de ce couplage est caractéristique du couple métal magnétique/métal non magnétique et de l'épaisseur de la couche non magnétique. Pour un couple donné, seule une augmentation de l'épaisseur de la couche non magnétique permet de réduire le couplage. Malheureusement au deuxième pic de couplage AF, l'amplitude de GMR est souvent fortement réduite à cause des « shunts » provoqués par les grandes épaisseurs de métaux; la sensibilité n'est donc pas forcement meilleure. Dans Co/Cu, cependant, la dégradation de l'amplitude de GMR étant limitée, la sensibilité est améliorée d'un facteur 2 par rapport au premier pic.

Dans notre approche, nous n'avons pas cherché à battre des records d'amplitude de GMR, mais plutôt à réduire le plus possible les champs de saturation pour optimiser les sensibilités dès le premier pic de couplage. Ce premier chapitre consacré aux multicouches, présente les caractéristiques structurales et magnétiques des deux systèmes que nous avons retenus. L'analyse des comportements magnétiques par le seul couplage d'échange RKKY sera souvent mise en défaut; nous verrons qu'il est alors nécessaire d'introduire un second terme de couplage pour garder une interprétation cohérente. Le chapitre suivant traitera plus en détail des origines et des implications de ce terme supplémentaire.

I. CHOIX DES MULTICOUCHES.

La sensibilité dans les multicouches est définie par le rapport de l'amplitude de GMR sur le champ de saturation. En prenant le modèle le plus simple d'un réseau de résistances en parallèles, on peut la décrire par l'équation:

$$S = \frac{\Delta\rho/\rho_s}{H_{sat}} = \left(\frac{\alpha-1}{\alpha+1}\right)^2 \frac{M_s t_m}{4J}$$

où $\alpha=\rho_\downarrow/\rho_\uparrow$, M_s est l'aimantation à saturation de la couche magnétique d'épaisseur, t_m son épaisseur et J est l'intensité du couplage inter-couches. Cette formulation montre que le meilleur matériau devra optimiser les termes α, M_s et t_m et dans le même temps minimiser J. Ce dernier terme est par ailleurs le plus critique car nous n'avons pas accés expérimentalement aux

paramètres qui l'influence. Des calculs basés sur une extension du modèle de couplage RKKY tiennent compte de la forme réelle de la surface de Fermi du métal non magnétique pour prédire les périodes d'oscillation du terme de couplage[3] et dans un modèle plus sophistiqué des multiples réflections dépendantes du spin aux interfaces métal NM/M pour estimer la force de ce couplage[4]. En reprenant l'équation de J donnée par Bruno:

$$J = Im\sum_{\alpha}\frac{\hbar v_z^{\alpha}k_{\alpha}}{4\pi^2 D^2}\Delta r_A^{\alpha}\Delta r_B^{\alpha}e^{i\phi\alpha}\left(e^{iqD}F_{\alpha}(D,T)+\frac{r_A^{\alpha}r_B^{\alpha}}{2}e^{i2qD}F_{\alpha}(2D,T)+\ldots\right)$$

on constate que l'intensité de J est déterminée principalement par trois termes:
1) L'épaisseur de couche non magnétique D
2) k_α qui est le rayon de courbure moyen de la surface de Fermi pour une direction du vecteur d'onde parallèle à la direction de croissance.
3) le produit des facteurs d'asymétrie de spin (Δr^{α}_A. Δr^{α}_B) des ondes réfléchies aux interfaces A et B.

En étudiant les formes des surfaces de Fermi on remarque qu'il est possible de réduire le rayon de courbure k_α en se plaçant suivant une direction de type <111> et ce quelque soit le métal noble utilisé (Au, Cu, Ag). Cette constatation rejoint les études de Egelhoff et al[5] qui ont remarqué une disparition des oscillations et un affaiblissement notable des couplages pour des textures de type <111>. Des études complémentaires menées sur des systèmes Fe/Cu <111>[6] et Co/Cu <111>[7] ont permis de vérifier l'affaiblissement des couplages mais pas la disparition des oscillations. Egelhoff explique cette différence par la présence de petits grains de texture <100> indétectables aux RX...Quoiqu'il en soit en fabriquant nos échantillon par PC, nous favoriserons une croissance de type <111> car c'est la direction la plus dense pour les matériaux cfc.

Le facteur d'asymétrie de spin qui apparait lors de la réflection de l'onde électronique sur les interfaces métal NM/M sera d'autant plus important que l'interface magnétique se comporte comme un « filtre de spin ». Les matériaux qui présentent une forte diffusion dépendante du spin à l'interface comme le Fe ou le Co se comporteront comme des filtres efficaces alors que ceux qui favorisent une diffusion dépendante du spin en volume (FeNi, NiCo ou FeCoNi) le seront bien moins; on minimisera donc le terme J en choisissant les matériaux de la seconde catégorie. Le choix de notre premier système se portera en conséquence sur le couple **$Fe_{19}Ni_{81}$/Ag** qui minimise J et posséde un fort terme α ($\cong$10). En contrepartie son aimantation est assez faible (860 emu/cm^3).

Pour le second système nous avons choisi de privilégier les termes α et Ms sans trop nous préoccuper de l'intensité du couplage. Les alliages de FeCo possédent de très forts moments atomiques qui peuvent atteindre 2.3μ_B pour 25% de Co[8]. Cependant les calculs de densités de

CHAPITRE III

MAGNETO-RESISTANCE GEANTE DANS DES SYSTEMES A FAIBLES CHAMPS DE SATURATION

INTRODUCTION.....53

I. CHOIX DES MULTICOUCHES.....53

II. CARACTERISATION STRUCTURALE DES ECHANTILLONS PAR RX.....56
II.A. Propriétés structurales de nos couches.....56
II.B. Détermination des épaisseurs de couches par RX.....58

III. CARACTERISATION MAGNETIQUE.....62
III.A. Système Ag/FeNi.....62
III.B. Système Ag/FeCo.....70

IV. TENUE THERMIQUE DES MULTICOUCHES Ag/FeNi.....76

CONCLUSION.....80

spin menés par Schwarz dans ces alliages prévoient un très faible terme α dans cette région (Fig III.1.a). Autour de 50% et 75% de Co au contraire, le terme α est maximum (Fig III.1.b et c) et le moment atomique se maintient entre 2.2μ_B et 1.9μ_B. L'alliage avec 50% de Co a dû être éliminé car il possédait deux phases cristallographiques, dont une seule était intéressante au niveau électronique. L'alliage $Co_{70}Fe_{30}$ qui posséde une aimantation double de celle du FeNi et un terme α supérieur pourrait se révéler un autre bon candidat. Par contre le terme J pourrait être assez fort car cet alliage à base de Fe et de Co doit présenter une diffusion dépendante du spin interfaciale dominante. Espérons que la texture <111> et le choix de l'Ag qui posséde le plus faible rayon de courbure des métaux nobles amoindriront son intensité. Finalement nous avons opté pour un second système du type **$Fe_{30}Co_{70}$/Ag.** Il devrait être meilleur que Fe/Ag qui a un terme α très faible (d'où un $\Delta\rho/\rho_s$<1% à 300K) ou que Co/Ag qui a un terme α équivalent mais une aimantation légérement plus faible.

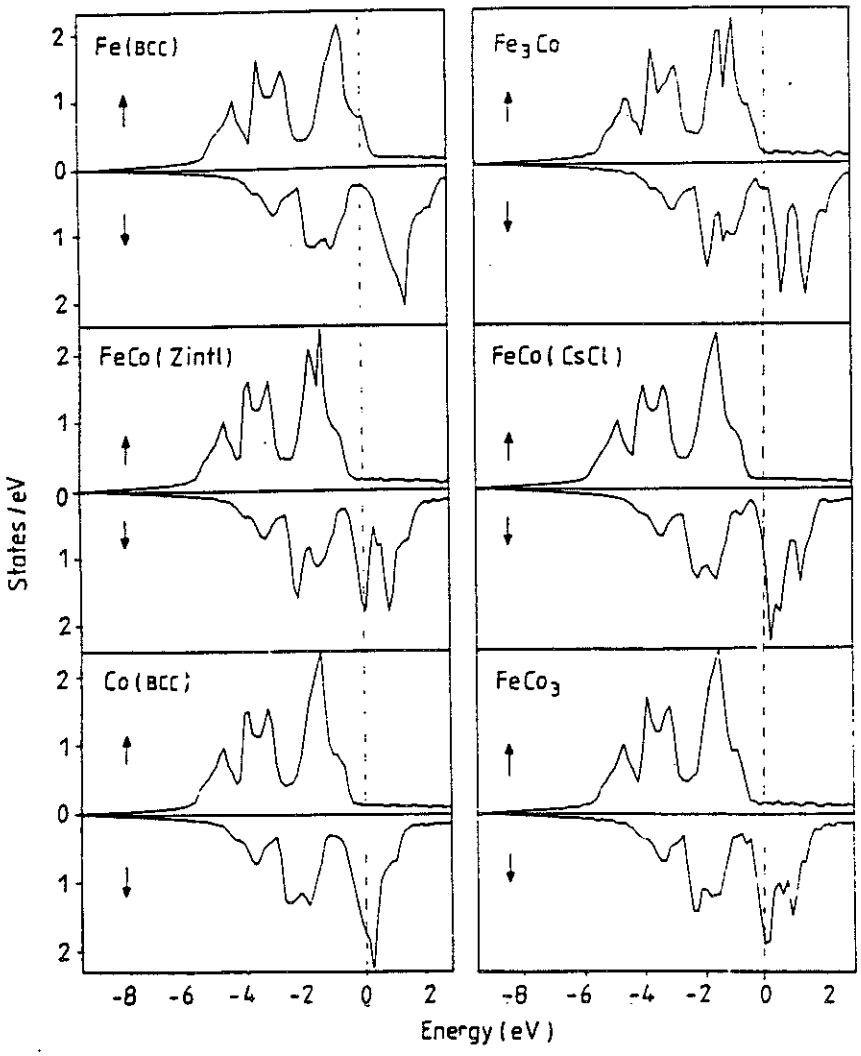


Figure III.1: Calculs de la projection des densités d'état des spins up et down pour quelques alliages de FeCo. On remarque un maximum de déséquilibre entre spin up et down pour $Fe_{50}Co_{50}$ (Zintl) et pour $Fe_{25}Co_{75}$. La préférence pour le deuxième alliage est expliquée dans le texte. D'après [9].

II. CARACTERISATION STRUCTURALE DES ECHANTILLONS PAR RX

Les multicouches $Fe_{19}Ni_{81}$/Ag (notées FeNi/Ag) et $Fe_{30}Co_{70}$/Ag (FeCo/Ag) ont été caractérisées par réflexions symétriques de rayons X sur un diffractomètre conventionnel Philips, utilisant la raie Kα du Co (λ=1.7902Å). Le déplacement θ/2θ est contrôlé par un ordinateur avec une résolution angulaire minimale de 0.01°.

Deux types de spectres sont utilisés pour l'analyse des multicouches:
La diffraction aux grands angles nous renseigne sur la **direction de croissance** (position des pics de Bragg), sur la **qualité des multicouches** (nombre de satellites), sur la **longueur de cohèrence** des grains dans la direction de croissance (largeur des pics à mi hauteur) et sur la période magnétique ou **super-période** Λ (écart angulaire entre deux pics successifs).

La diffraction aux petits angles donne quant à elle des informations sur la **super-période**, sur la **qualité des multicouches** (nombre de pics), mais aussi sur la **rugosité d'interface** (franges de Kiessig et atténuation de l'intensité diffractée).

Une dernière mesure peut être signalée, il s'agit des « Rocking curves », qui consistent à faire tourner l'échantillon sur son axe, pour un angle 2θ de Bragg, en ayant fixé les positions de la source et du détecteur. La **dispersion angulaire** autour de la direction moyenne de croissance s'estime à partir de la largeur à mi hauteur du pic obtenu.

L'analyse des propriétés structurales des multicouches Ag/FeNi a été largement décrite dans deux thèses cousines de celle-ci effectuées au DRF par A.Mallon[12] et C.Cowache[15]. Nous reprendrons dans le cadre de la présente thèse les principaux résultats en s'attachant à deux éléments essentiels pour l'analyse magnétique:
*Une estimation qualitative des directions de croissance et de la qualité des couches déposées.
*Une méthode de mesure précise des épaisseurs respectives des couches magnétiques et non magnétiques.

II.A. Propriétés structurales de nos couches.

L'analyse des spectres de diffraction aux grands angles tels que celui présenté sur la figure III.2 indique une **direction de croissance de type <111>**, classique pour les métaux cfc déposés par PC.
En effet, les positions attendues des pics de diffraction sur les plans (111) pour le FeNi et l'Ag sont représentées par les lignes verticales; mais compte tenu des faibles épaisseurs de couches, les réflexions résultent d'interférences entre les deux réseaux et il faut interprèter le spectre comme une réflexion sur un réseau unique dont la distance inter-planaire est la moyenne de celles des deux matériaux. Ainsi le pic principal d'ordre 0 a une position 2θ donné par la relation:

$$2\theta = 2 * sin^{-1}\left(\frac{\lambda_{Co}}{2 < d >}\right) = 2 * sin^{-1}\left(\frac{\lambda_{Co}}{2\Lambda}(na + nb)\right) \quad (1).$$

où $<d> = (nad_{Ag[111]}+nbd_{FeNi[111]})/(na+nb)=(\Lambda/(na+nb))$, na et nb étant les nombres de plans atomiques et $d_{Ag[111]}$, $d_{FeNi[111]}$ les distances inter-planaires des matériaux considérés.

Autour de ce pic principal, on trouve deux séries de pics satellites (notées ±1 et ±2) caractéristiques de la superpériode de la multicouche, qui attestent, vu leur nombre, d'une **bonne qualité d'empilement** de la multicouche. Les positions de ces pics satellites sont données par la relation générale:

$$\sin\theta_{n,m} = \frac{\lambda_{Co}}{2}\left(\frac{n}{d} + \left(\frac{m}{\Lambda}\right)\right) = \frac{\lambda_{Co}}{2\Lambda}\left((na + nb)n + m\right) \quad (2)$$

Si n=1 et m=0, on retrouve le pic principal; si m=±1 ou ±2 on détermine les positions des satellites d'ordre m.

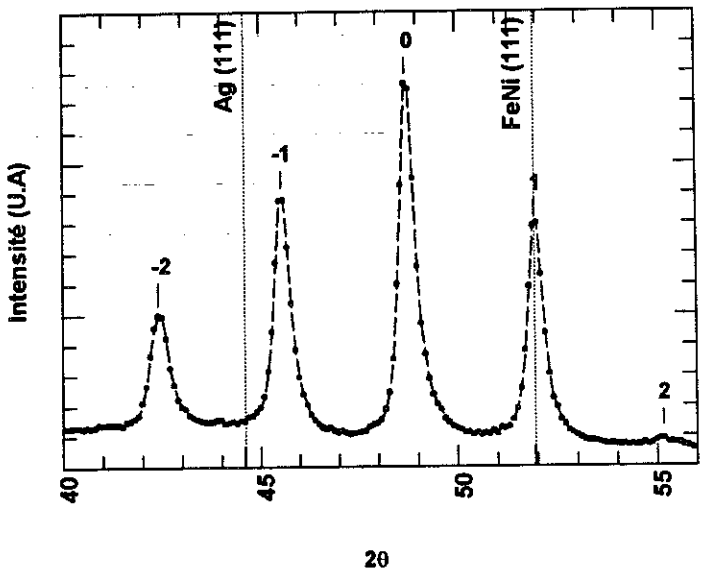


Figure III.2: Spectre de diffraction X aux grands angles sur une multicouche FeNi(25Å)/Ag(11Å) déposée à 100K.

La définition de la direction de croissance peut être complétée par une mesure de « Rocking curve » sur le pic principal qui donne un angle de désorientation maximum de 15°. cette dispersion indique que la croissance est **assez fortement texturée <111>**, mais qu'il n'est pas exclu que de petits grains d'orientation différentes puissent exister, comme le faisait remarquer Egelhoff.

L'étude aux grands angles des couches CoFe/Ag a révélé une croissance cfc <111> de la couche d'Ag, mais ne permet pas de déterminer précisement le type de croissance pour le FeCo. En effet il y a deux distances inter-planaires équivalentes: l'une correspondant à une croissance cfc <111> et l'autre à un cc <220>. La structure cc est la plus naturelle pour l'alliage de FeCo considéré puisque la transition cc→cfc ne s'opére qu'entre 85 et 90% de Co[9]. Néanmoins, nous privilégions la texture <111> cfc car c'est la direction la plus dense et compte tenu des très faibles épaisseurs de CoFe (2 à 8Å), ce dernier doit être maintenu sous contraintes par l'Ag cfc <111>.

L'exploitation des spectres de diffraction aux petits angles (Fig III.3) apporte deux précieuses informations sur la qualité des multicouches:
1) Le grand nombre de pics de Bragg observables est le signe d'une bonne qualité d'empilement des couches.
2) La présence des franges de Kiessig, dues aux interférences entre rayons X incidents et réfléchis au niveau des surfaces externes des couches, ainsi que la lente atténuation de l'intensité diffractée sont les signes d'une **faible rugosité d'interface**.

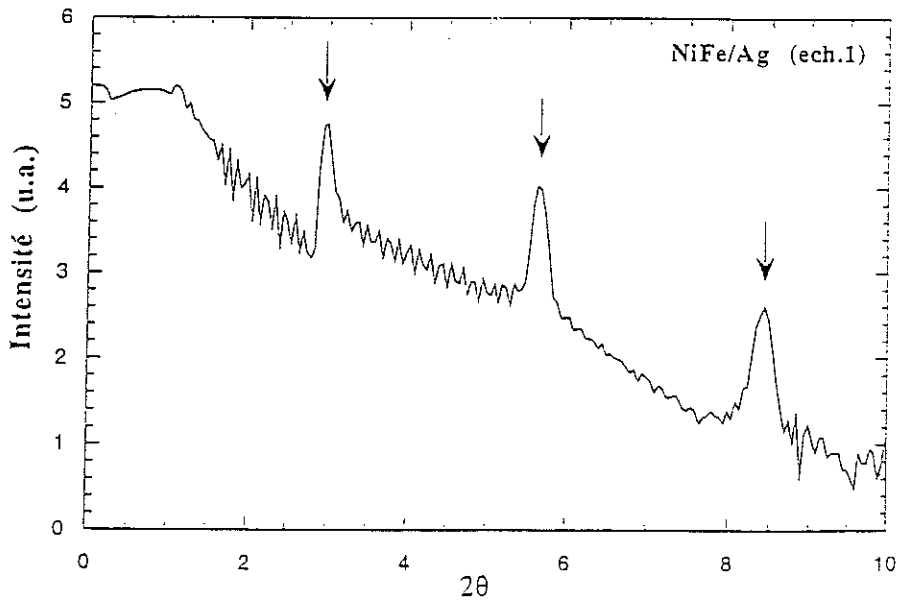


Figure III.3: Diffraction aux petits angles sur une multicouche Ag(8.65Å)/FeNi(28Å) déposée à 100K

II.B. Détermination des épaisseurs de couches par RX:

II.B.1. Méthode.

Les mesures de rayons X nous donnent accès à deux équations pour la détermination des épaisseurs respectives de chaque couche:

- $\Lambda=\lambda_{Co}/(\sin\theta_{1,1}-\sin\theta_{1,-1})$ qui dérive de l'écart angulaire des pics satellites du 1er ordre.
- $<d>=\lambda_{Co}/(2*\sin\theta_{1,0})$ qui est liée à la position du pic principal.

or ces deux valeurs sont reliées aux épaisseurs de couches par $\begin{cases} < d >= \dfrac{n_{Ag}.d_{Ag} + n_{FeNi}.d_{FeNi}}{n_{Ag} + n_{FeNi}} \\ \Lambda = n_{Ag}.d_{Ag} + n_{FeNi}.d_{FeNi} \end{cases}$ (3)

Le calcul des épaisseurs par les équations (3) nécessite pour sa résolution que les distances inter-planaires des couches minces soient supposées identiques à celle du massif. Pour une détermination plus rigoureuse des épaisseurs une méthode mettant en jeu des échantillons à double période a été mise au point au DRF pour remonter aux valeurs réelles des distances inter-planaires dans les couches minces. Pour décrire cette méthode considérons une multicouche du type $[(Ag_{16}/FeNi_5)_{n1}/(Ag_{25}/FeNi_5)_{n2}]$. Les valeurs de 16, 5 et 25Å de l'exemple sont les épaisseurs nominales définies par les vitesses de dépôt et les temps de dépôt.

La détermination de ces distances se fait en plusieurs étapes; tout d'abord on estime les super-périodes Λ_1 et Λ_2 par une mesure aux petits angles (qui présentent deux séries distinctes de pics de Bragg correspondant aux deux super-périodes) grâce à la relation:

$$\Lambda = \lambda_{Co}\sqrt{\frac{3}{4\left(\sin^2\theta_2 - \sin^2\theta_1\right)}} \qquad (4)$$

On remonte ensuite facilement aux épaisseurs déposées $x(FeNi_5)$, $y(Ag_{16})$, $z(Ag_{25})$ par le système:

$$\begin{cases} x + y = \Lambda_1 \\ x + z = \Lambda_2 \\ z = \dfrac{25}{16}y \end{cases}$$

La valeur de z est une simple homothétie de y, car les épaisseurs sont controlées par la tension appliquée sous chacune des cibles. Aux grands angles les positions des deux pics principaux sont définies par la relation (2) pour Λ_1 et Λ_2. Il est donc possible de calculer nAg_{25},nAg_{16} et $nFeNi_5$ par le système:

$$\begin{cases} \sin\theta_1 = \dfrac{\lambda_{Co}}{\Lambda_1}\left(nAg_{16} + nFeNi_5\right) \\ \sin\theta_2 = \dfrac{\lambda_{Co}}{\Lambda_2}\left(nAg_{25} + nFeNi_5\right) \\ nAg_{25} = \dfrac{25}{16}nAg_{16} \end{cases}$$

Enfin en réintégrant ces valeurs dans le premier système, on trouve les valeurs des 3 distances inter-planaires (cf tableau III.1).

Matériau	d[111]massif (Å)	d[111]couche mince (Å)	Δd/d (%)
FeNi	**2.044**	**2.066**	**1.1**
FeCo	**2.07**	**2.11**	**1.9**
Ag	**2.3586**	**2.377**	**0.78**

Tableau III.1: valeurs corrigées des distances inter-planaires [111] pour des couches minces de FeNi, FeCo et Ag

La lecture du tableau ci-dessus fait apparaître que les distances interplanaires du FeNi et de l'Ag en couches minces sont très proches des valeurs du massif (≅1%), alors que le FeCo présente un écart de l'ordre de 2%. Ce paramètre de maille, légérement dilaté dans le FeCo peut être la conséquence d'un alliage AgCoFe à l'interface, à fort paramètre de maille, qui induit de fortes contraintes sur les couches ultraminces de CoFe.

Dans la suite de l'étude nous avons admis que les distances déterminées ci-dessus restaient constantes dans les autres séries. Ainsi à partir des seules mesures aux grands angles de Λ et <d>, nous pouvions tirer nAg et nFeNi ou nFeCo de:

$$nAg = \frac{\Lambda(dFeNi - < d >)}{< d > (dFeNi - dAg)} . et . nFeNi = \frac{\Lambda(< d > - dAg)}{< d > (dFeNi - dAg)}$$

Remarque complémentaire: La largeur des pics de réflexions sur les plans (220) obtenue par mesures de RX en transmission a permis d'estimer la taille des cristallites dans les plans à environ 50Å[9]. Cette information nous donne une idée des dimensions latérales des terrasses au niveau des interfaces entre couche magnétique et non magnétique. Des observations plus récentes en microscopie électronique en transmission donnent plutôt des tailles de cristallites de l'ordre de 250Å.

II.B.2. Détermination des épaisseurs des séries Ag/CoFe et Ag/FeNi.

Deux séries de multicouches Ag/FeNi et Ag/CoFe ont été déposées pour étudier leur propriétés magnétiques dans la zone d'épaisseur d'Ag correspondant au premier pic de couplage AF. Le choix de l'épaisseur nominale de permalloy est le résultat d'une étude précédente sur l'influence de l'épaisseur de FeNi sur l'amplitude de GMR[10].

Il apparait qu'il existe une plage d'épaisseurs optimales, entre 15 et 30Å pour laquelle la GMR passe par un maximum. Pour des épaisseurs supérieures, le shunt électrique par la couche

magnétique détruit progressivement l'effet GMR. Nous avons donc fixé l'épaisseur nominale de FeNi à 26Å. Pour le CoFe, l'épaisseur n'a pas été optimisée car ces échantillons faisaient partie d'une étude plus vaste des propriétés magnétiques de systèmes à couches magnétiques ultra-fines[11]. La valeur de 7Å n'est pas loin de l'optimum au niveau des propriétés de transport.

Le tableau ci-dessous rassemble les épaisseurs déterminées par la méthode décrite précédemment pour chaque couche des deux systèmes.

Multicouche→	CoFe/Ag			FeNi/Ag		
Echantillon↓	Λ(Å)	e_{CoFe} (Å)	eAg(Å)	Λ(Å)	e_{FeNi} (Å)	eAg(Å)
B	19.5	7.1	12.4	38.7	26	12.7
C	19.30	7.05	12.25	38.6	26	12.6
D	19	7	12	38.4	26	12.4
E	18.60	6.9	11.7	38.15	25.95	12.2
F	18.15	6.80	11.35	37.65	25.95	11.70
G	17.4	6.6	10.8	36.95	25.9	11.05
H	16.65	6.4	10.25	36.3	25.8	10.5
I				35.5	25.70	9.8
J				34.7	25.6	9.1
K				33.7	25.40	8.3
L				32.75	25.25	7.5

Tableau III.2: Valeurs des super-périodes et des épaisseurs des couches magnétiques et non magnétiques calculées d'après les RX. Les lettres B→L représentent les positions des échantillons sur le disque lors du dépôt; l'échantillon B étant le plus au centre.

Remarque: Les valeurs que nous donnons dans ce tableau, dont la précision atteint le centième d'Angström n'ont naturellement aucune réalité physique, elles sont simplement le résultat du dépuoillement des spectres. L'épaisseur est une variable discrète puisqu'elle est liée au nombre de plans atomiques déposés, mais il est courant que les plans de surface ne soient pas complets. La mesure aux RX, macroscopique, intégre toutes ces variations d'épaisseurs et les traduit en une valeur moyenne continue d'épaisseur équivalente du matériau.

Chaque dépôt se caractérise par deux gradients différent comme le montre le schéma suivant. Le premier gradient (noté 1), le plus fort, apparait selon la ligne joignant les centres des deux cibles. Il est minimisé au niveau de chaque échantillon par la découpe de lamelles perpendiculaires à cette ligne. C'est ce gradient que l'on relève dans le tableau précédent. Pour le FeNi il est limité à ≅3%, ce qui n'affectera guère les propriétés magnétiques de la série, puisque les variations d'épaisseur de FeNi restent bien en deça des limites de la zone active. Le

gradient d'Ag plus important permet en une seule série de bien encadrer le 1er pic de couplage attendu autour de 11Å.

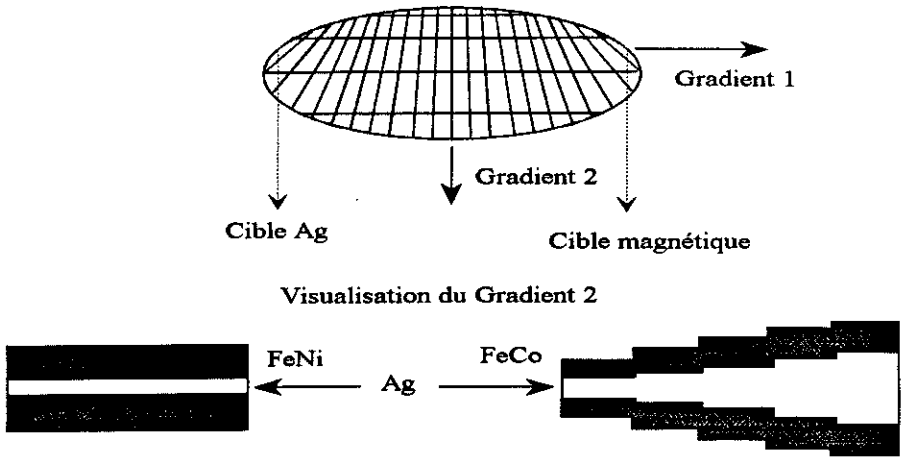


Figure III.4: Définition des deux directions de gradients et visualisation du gradient longitudinal dans les systèmes Ag/FeNi et Ag/FeCo.

Le gradient 2, qui est sensible dans la longueur des échantillons est négligeable dans le système FeNi/Ag, par contre il est bien plus important dans le système FeCo/Ag à cause de l'utilisation de cibles neuves (cf figure III.4 bas). Ces fortes variations d'épaisseur pourraient être la source de phénomènes peu usuels liés à des couplages très inhomogènes.

III. CARACTERISATION MAGNETIQUE.

III.A. Système Ag/FeNi.

III.A.1.Mesures d'aimantation et oscillation du terme de couplage.

Les mesures d'aimantation ont été effectuées sur un magnétomètre à échantillon vibrant d'Oxford Instruments (VSM) dont les caractéristiques Température/Champ sont les suivantes:

$$10K<\text{Température}<300K$$
$$0Oe<\text{Champ magnétique}<80kOe$$

Cette technique de mesure est plus rapide que la méthode classique d'extraction utilisant un SQUID, tout en gardant une très bonne sensibilité ($\cong 10^{-6}$ emu).

Les courbes d'aimantation à 300K de quelques épaisseurs caractéristiques de cette première série sont présentées sur la Figure III.5. On peut les regrouper en 3 régimes de comportements selon les intensités du couplage inter-couche:

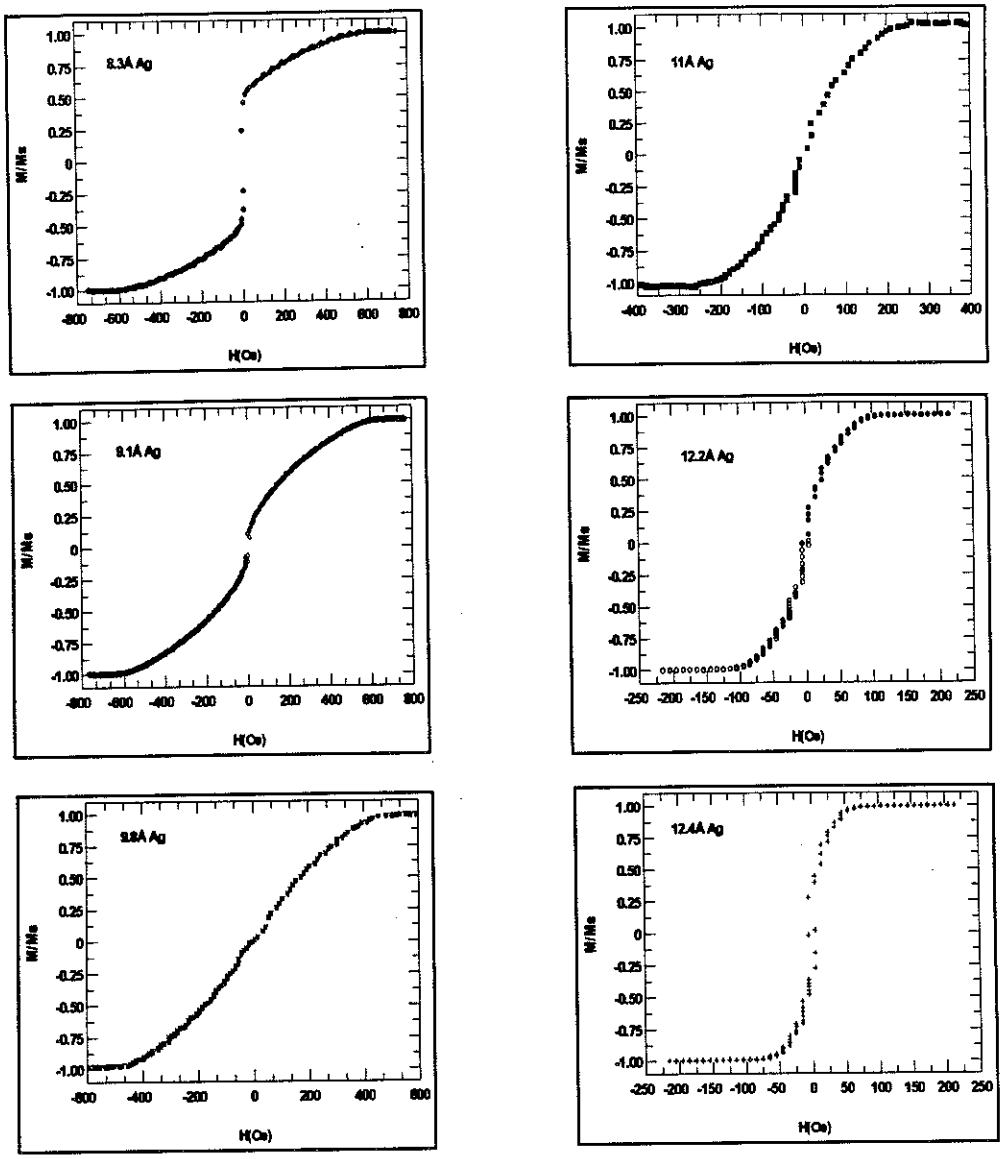


Figure III.5: Courbes d'aimantation à 300K pour différentes épaisseurs d'Ag. Les valeurs des aimantations sont normalisées par leurs valeurs en champs forts (Ms).

- Entre 7.5 et 9.1Å d'Ag, l'émergence du couplage AF est caractérisée par la rapide augmentation du champ de saturation. La contribution ferromagnétique (aimantation rémanente) diminue progressivement avec le renforcement du couplage, mais perdure tout de même jusqu'à 9.3Å d'Ag. L'explication classique pour ce rémanent fait intervenir des fluctuations d'épaisseurs de la couche non magnétique et/ou magnétique au sein de la multicouche, qui favorisent l'existence de zones couplées ferromagnétiquement. Au delà d'une certaine épaisseur (ici ≅9.3Å), ces variations deviennent insuffisantes pour maintenir des zones de couplage opposé. Un autre point important est la **non linéarité des courbures**

au dessous de Hsat. Un tel comportement est tout à fait contraire à celui observé dans Ag/Ni qui suivait parfaitement les modèles classiques de couplage AF[12]. La présence de ces courbures pourrait être le signe de couplages « hybrides ».

- Entre 9.8 et 11.7Å, l'intensité du couplage diminue comme le reflète le champ de saturation. Dans cette gamme d'épaisseur les caractéristiques sont plus linéaires conformément au modèle classique, quoiqu'il demeure toujours une légére courbure.

- Entre 12.2 et 12.7Å, l'intensité du couplage devient faible si bien que les variations d'épaisseurs engendrent à nouveau des contributions ferromagnétiques. On note aussi, comme aux plus faibles épaisseurs une courbure prononcée.

L'explication du rémanent par des fluctuations d'épaisseurs, même si elle semble bien corréler les résultats est assez peu satisfaisante. En effet, il faudrait admettre que dans nos multicouches, il existe des fluctuations de la période magnétique de l'ordre de 5%!
De telles variations seraient facilement détectables, par les mesures de RX aux grands angles, car elles provoqueraient un élargissement des pics[13], or nous n'avons jamais observé un tel phénomène.

Une interprétation plus cohérente de ces contributions ferromagnétiques, peut être envisagée par l'adjonction d'un second terme de couplage, dont les origines seront détaillées ultérieurement.
La compétition entre le **terme bilinéaire** classique J et un **terme biquadratique** B, peut donner naissance dans certains cas à des configurations où les aimantations ne sont plus colinéaires. Il existe alors une projection non nulle des composantes de l'aimantation selon l'axe du champ magnétique, qui est la source du rémanent observé. Ce terme supplémentaire peut aussi expliquer les courbures d'aimantation dans les zones de faible couplage bilinéaire ou lorsque B domine J.
Dans ce chapitre nous nous contenterons de considérer le seul couplage bilinéaire J, pour l'interprétation des différents phénomènes, en faisant remarquer, le cas échéant, les limitations liées à sa seule prise en compte. Nous pourrons ainsi, par la suite, comparer les résultats obtenus en tenant compte d'un seul ou des deux termes de couplage.

* Oscillation du terme de couplage:

L'oscillation du champ de saturation avec l'épaisseur d'Ag indique bien que nous avons encadré le premier pic de couplage A.F. Remarquons d'ailleurs les très faibles valeurs de ces champs de saturation pour un premier pic, surtout pour les plus fortes épaisseurs d'Ag. L'utilisation du Permalloy, semble avoir été judicieuse.
Les termes de couplage bilinéaire J se déduisent, à partir des valeurs des champs de saturation par la relation $J=H_sM_st/4$ où H_s est le champ de saturation et t l'épaisseur de la couche

magnétique. La valeur de M_s mesurée à 300K valant 90% de la valeur à 4K, qui correspond à celle du massif, on peut remonter aux valeurs de J (Tableau III.3).

ép Ag (Å)	12.7	12.6	12.4	12.2	11.7	11	10.5	9.8	9.1	8.3	7.5
10^{-3}J (erg/cm^2)	**1.16**	**2.01**	**3.01**	**5.01**	**7.65**	**11.3**	**16.5**	**22.9**	**28.3**	**28.1**	**20.4**

Tableau III.3: Valeurs des constantes de couplages J, calculées à partir des champs de saturation.

Comparées à d'autres systèmes comme Fe/Cr ou Co/Cu, nos valeurs de J sont plus faibles d'un facteur 100 à 1000! La combinaison d'une croissance de type <111>, d'un matériau magnétique à diffusion dépendante du spin en volume prédominante et d'une grande épaisseur de la couche magnétique (26Å) a donc bien fonctionné. Nos valeurs sont cependant très comparables avec d'autres systèmes à base de Permalloy. Dans FeNi/Au et FeNi/Cu J=0.02erg/cm^2 à 300K[14]; le choix du métal non magnétique n'est donc pas le point critique. Le système $Ni_{80}Co_{20}/Cu$[15] posséde aussi un très faible terme de couplage (J=0.035 erg/cm^2); ce qui confirme que la faible intensité de J est valable pour tous les matériaux où la diffusion en volume domine.

Les oscillations de couplage ont été décrites par beaucoup d'auteurs, mais la théorie la plus généralement admise est celle développée par Bruno et Chappert[3]. Dans leur modèle, qui est une extension du couplage RKKY aux multicouches magnétiques, le terme J s'exprime comme:

$$J(t_{Ag}) = -\left(3I_0\frac{m^*}{m}\right)\sin\left(2\pi\left(\frac{t_{Ag}}{\Lambda}\right)+\varphi\right)\frac{\exp\left(-\frac{t_{Ag}}{t_c}\right)d^2}{t_{Ag}{}^2} \qquad (5)$$

avec I_0=cte=$(A/V_0)^2S^2m/16\pi^2\hbar^2$=13 erg/cm^2 dans leur calcul
d=distance inter-planaire=2.35Å pour l'Ag [111]
m*= masse effective. le rapport théorique m*/m=0.17 pour l'Ag [111]
Λ=période des oscillations de couplage.
φ= déphasage
$\exp(-t_{Ag}/t_c)$ est un facteur d'atténuation structural lié aux imperfections ou à la rugosité[16]. t_c est une longueur d'atténuation caractéristique du système, au delà de laquelle le couplage s'atténue rapidement.

Nous avons utilisé cette expression pour décrire les variations de J déduites des champs de saturation (fig III.6). Les paramètres de l'éq(5) sont donnés dans le tableau suivant.

	$I_0(erg.cm^{-2})$	$\Lambda(Å)$	$\varphi(°)$	$t_c(Å)$
Théorie[3]	**13**	**13.96**	**-90**	**8.2**
Courbe pointillée	**13**	**13.1**	**-10.9**	**3.48**
Courbe continue	**5.65**	**12.62**	**-14.88**	**4.94**

Tableau III.4: Valeurs des paramètres de l'eq (5) utilisées dans la figure III.6 comparées aux valeurs théoriques dans l'Ag <111>.

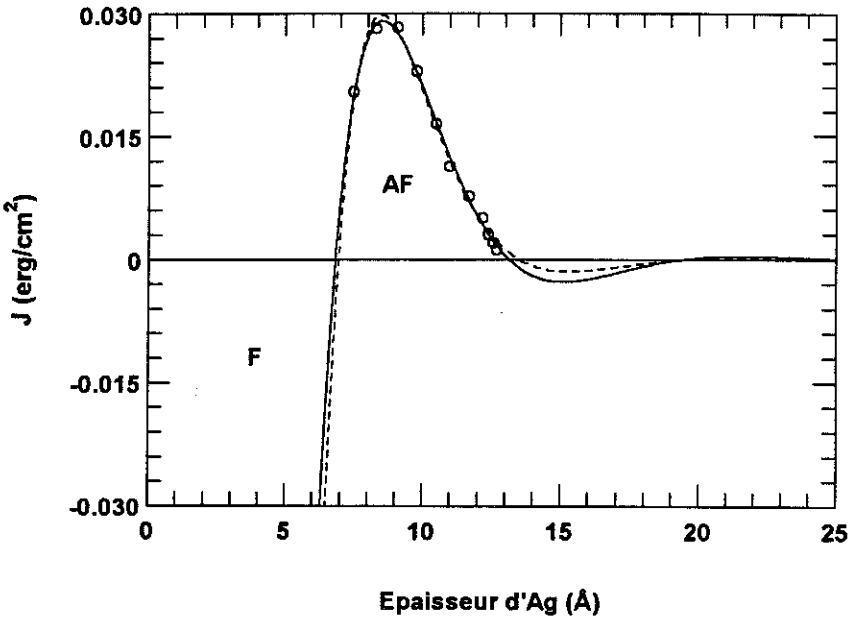


Figure III.6: Détermination des oscillations de couplage d'après l'eq (5). à 300K,

La courbe en pointillés où I_0 est bloqué à sa valeur théorique décrit correctement les points expérimentaux, avec cependant quelques imperfections aux plus fortes épaisseurs. La valeur de la période d'oscillation est cohérente avec la valeur théorique ($\Delta\Lambda/\Lambda\cong6\%$), par contre la phase et l'épaisseur critique en sont très éloignées. Le problème de la phase est inhérent au modèle de Bruno, il n'y a donc pas lieu d'y accorder une grande importance. La très faible valeur de tc trouve, pour sa part, une explication dans le mode de dépôt qui ne favorise pas une excellente qualité structurale. La présence de nombreux défauts, comme les dislocations et la rugosité introduisent des interférences destructives qui affectent le couplage. Par exemple les dislocations d'interface, dues à la forte différence des paramètres de maille entre le FeNi et l'Ag (η=14%), détruisent la symétrie de translation parallélement aux plans des couches. Il en résulte une forte atténuation du couplage pour $t_{Ag} > tc = d / (|\eta|tg\gamma_\alpha)$ où γ_α représente l'angle entre le vecteur vitesse au niveau de Fermi et l'axe z. Dans les directions <111> cet effet est maximum car $\gamma_\alpha\approx64°$ si bien que dans nos multicouches Ag/FeNi $tc\approx8.2Å$. L'effet de la rugosité joue un rôle assez similaire en créant une rupture de l'invariance par translation, cependant l'épaisseur critique associée $tc = \xi / tg\gamma_\alpha$ (ξ représente la longueur de

corrélation latérale) moins contraignante que la précédente car il faudrait des terrasses de très faible taille pour atténuer fortement le couplage.

La courbe continue où I_0 est libre « colle » un peu mieux aux points expérimentaux; la période est un peu moins correcte ($\Delta\Lambda/\Lambda\cong 10\%$), mais tc y gagne beaucoup (+45%). Dans tous les cas la forte atténuation, fait quasiment disparaître le second pic de couplage AF. Expérimentalement nous ne sommes jamais parvenus à observer une quelconque magnéto-résistance au deuxième pic à 300K, signe que le couplage antiferromagnétique avait effectivement disparu. Contrairement à Egelhoff nous attribuons cette perte d'oscillation plus à la faible qualité des couches, qu'à la direction de croissance <111>.

A basse température, l'intensité du couplage atteint 0.1erg/cm^2, on peut donc espérer qu'il ne sera pas trop atténuer au niveau du deuxième pic, pour donner une GMR observable...

III.A.2.Mesures de transport.

Les mesures de Magnéto-résistance sont effectuées sur un appareil développé au laboratoire par S.Auffret et J.Pierre[17]. La technique classique de mesure en courant alternatif avec des contacts quatre pointes a été adoptée afin de s'affranchir de toute perturbation d'origine thermoélectrique. Le courant alternatif, dont la fréquence est fixée à 80Hz, est délivré par un générateur haute stabilité et la tension recueillie au niveau de l'échantillon est injectée en mode différentiel aux bornes d'une détection synchrone à fort taux de réjection de mode commun (important pour les mesures des faibles signaux). La gamme champ/température de cet appareil s'étend de 0 à 60kOe et de 1.5K à 300K.

Les résistivités en champ nul de la série sont rassemblées dans le tableau suivant.

Echantillon	*B*	*C*	*D*	*E*	*F*	*G*	*H*	*I*	*J*	*K*	*L*
ρ(μΩcm)	***30.81***	***33***	***36.01***	***36.52***	***37.01***	***37.59***	***38.29***	***38.5***	***38.35***	***38.65***	***39.96***

Tableau III.5: Résistivités expérimentales à 300K et H=0

Les valeurs mesurées sont comparables à celles relevées dans les systèmes FeNi/Au et Fe/Cr, déposés par EJM à 300K, puisque $\rho(H=0)\cong 47\mu\Omega$cm et $54\mu\Omega$cm respectivement[18]. Au niveau du transport, nos couches possédent donc une bonne qualité structurale avec sans doute assez peu d'interdiffusion entre le permalloy et l'Ag.

La résistivité d'un matériau à température T plongé dans un champ magnétique H est décrite par la relation:

$$\rho(H,T) = \rho_0 + \rho_{ph}(T) + \rho_m . F\left(\frac{M}{M_s}\right) \qquad (6)$$

où $\rho_0=\rho(H_{sat},T=0K)$ est la résistivité résiduelle due aux défauts, $\rho_{ph}(T)$ la résistivité de phonons, et ρ_m la résistivité magnétique. La fonction $F(M/M_s)$ corréle l'amplitude de ρ_m aux variations thermique et sous champ de l'aimantation. Elle prend les valeurs extrêmes $F(M/M_s)$ =0 pour $M=M_s$ et 1 pour M=0.

La Magnéto-résistance est le plus souvent exprimée dans la littérature comme le rapport de la résistivité magnétique (ρ_m) sur la résistivité à saturation ($\rho(H_s)$); soit comme la variation relative de résistivité lors de l'application un champ magnétique.

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_s}(H) = \frac{\rho(H)-\rho(H_s)}{\rho(H_s)} = \frac{\rho_m}{\rho_0+\rho_{ph}} F\left(\frac{M}{M_s}\right) \qquad (7)$$

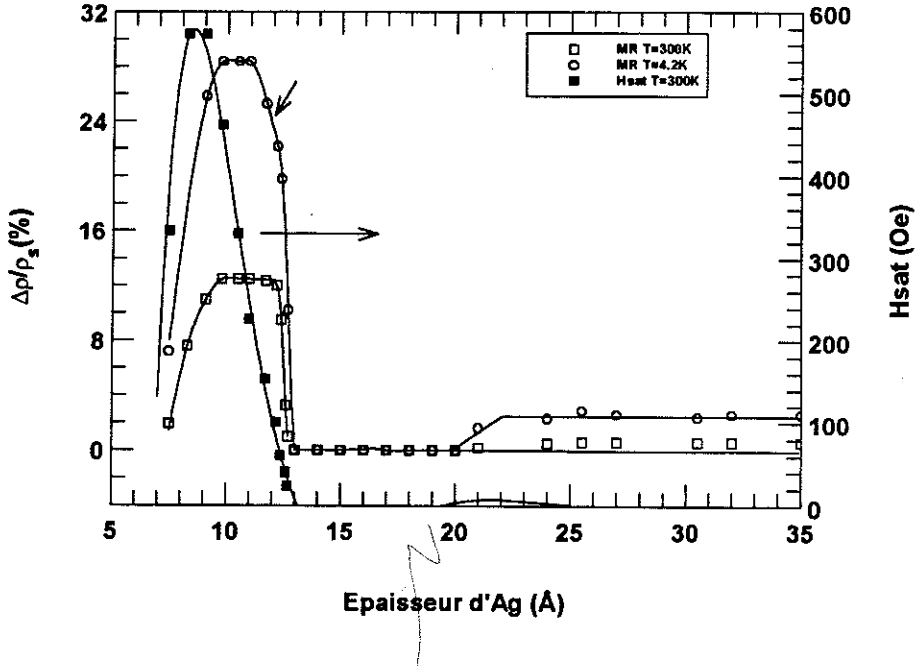


Figure III.7: Amplitudes de MR à 300K et 4.2K et champs de saturation à 300K. La courbe joignant les points de MR est un guide pour les yeux. Pour les champs de saturation, la courbe est un ajustement de l'Eq (5) avec les paramètres (I_0=5.65ergs/cm^2, Λ=12.6Å, φ=-14.88°et t_c=4.94Å).

Pour cette relation l'amplitude de GMR est positive et peut varier entre 0 et l'infini. Une autre convention que l'on applique plutôt dans les systèmes granulaires où la saturation n'est pas atteinte utilise la valeur de la résistivité en champ nul à la place de celle à saturation. L'amplitude est alors comprise entre -1 et 0. On peut aisément passer de l'une à l'autre par la formule:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho(H=0)} = \frac{-\frac{\Delta\rho}{\rho(Hsat)}}{1+\frac{\Delta\rho}{\rho(Hsat)}}$$

Les mesures de transport dans Ag/FeNi à 300K et 4.2K (Figure III.7) appellent plusieurs remarques:

1)L'amplitude de magnéto-résistance de cette série, loin d'être aussi importante que dans Co/Cu ou Fe/Cr, atteint tout de même **12.5% à 300K** et **28.5% à 4.2K**, ce qui la classe parmi les plus fortes valeurs observées dans la littérature. La forte valeur du terme α du FeNi, qui caractérise le déséquilibre des densités d'état, en est grandement responsable.

2) A 300K on observe qu'un seul pic de GMR, conformément à l'ajustement des termes de couplage qui prévoyait une rapide disparition de tout couplage vers les grandes épaisseurs.
A 4.2K on note par contre la résurgence d'une faible GMR (≅3%) aux fortes épaisseurs (>20Å) mais qui ne présente pas de caractère oscillant. Cette GMR peut être une conséquence de la perte de couplage. En effet les aimantations dans des couches découplées, sont désordonnées au grès des défauts magnétiques et/ou structuraux ce qui donne une GMR finie. L'amplitude est d'autant plus faible que la forte épaisseur d'Ag constitue un « shunt » important pour de nombreux électrons. Enfin cette GMR n'est détectable qu'à basse température car le lpm à 300K est trop court comparé aux épaisseurs de couches.

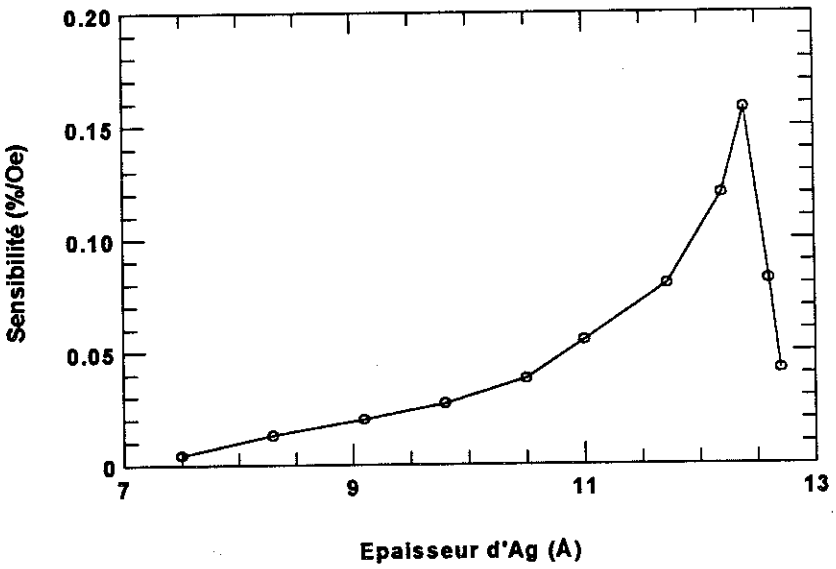


Figure III.8: Sensibilité à 300K

3)Les formes des 1er pics de couplage sont aussi dignes d'intérêt. En effet, on remarque l'existence de plateaux où l'amplitude de GMR reste constante. Un tel comportement n'a jamais été signalé dans la littérature, mais c'est peut être simplement le fait d'un trop faible échantillonnage des épaisseurs de couches non magnétiques.
En faisant le parallèle à 300K avec les courbes d'aimantation on observe que la position et la largeur du plateau correspondent à la gamme d'épaisseur d'Ag qui ne présente aucune aimantation rémanente. Dans cette zone le couplage semble donc homogène ou du moins le couplage J domine largement B.
Aux basses températures, on dénote un rétrécissement de la largeur du plateau (signalé par la flèche) qui sera interprété par la forte dépendance thermique du terme biquadratique qui peut surpasser le terme bilinéaire dans les zones où le couplage s'affaiblit et réduire la GMR.

4)Compte tenu des très faibles champs de saturation, on obtient une sensibilité remarquable (Fig III.8) avec un maximum **0.16%/Oe** pour l'échantillon D (12.4Å Ag). Cette sensibilité est 4 fois supérieure à celle obtenue dans Co/Cu au deuxième pic de couplage[2] et 6 fois supérieure aux systèmes FeNi/Au et FeNi/Cu au premier pic de couplage. Seul le système ternaire NiFeCo dépasse quelque peu cette valeur avec 0.18%/Oe[19]. Ce système est donc extrêmement prometteur pour des applications.

III.B. Système Ag/FeCo.

III.B.1.Transport à 300K et aux basses températures.

Dans cette partie consacrée aux multicouches Ag/CoFe, nous ne présenterons que les mesures de transport, afin de comparer les sensibilités des deux systèmes. Les mesures d'aimantation, montrent une caractéristique de couplage antiferromagnétique sur l'ensemble de la série, car nous n'avions pas un échantillonnage suffisant d'épaisseurs pour observer les descentes de part et d'autre du plateau.

La recherche de l'épaisseur optimale de la couche magnétique n'a pas été aussi fouillée que pour le système précédent. Cependant un échantillonnage entre 2 et 10Å de CoFe a permis tout de même de dégager qu'une épaisseur de ≅7Å représentait le meilleur compromis pour les propriétés de transport. Au dessous de cette valeur l'amplitude de GMR évolue peu jusqu'à 4Å, mais les champs de saturation qui varient en $1/t_{CoFe}$ augmentent rapidement. Au dessus c'est l'amplitude qui chute, semblant indiquer qu'il existe dans cet alliage une **forte diffusion en volume des électrons up.** En effet même si l'alliage de FeCo a une diffusion interfaciale prédominante l'amplitude de GMR ne décroit pas forcément avec l'épaisseur tant que la diffusion est limitée à un type de spin. Dans cet alliage, au dessus de 6Å il semble que le second type de spin soit lui aussi diffusé si bien que l'effet GMR disparait rapidement.
Cette faible valeur de CoFe utilisable est un handicap supplémentaire pour l'obtention de faibles champs de saturation.

Remarque: La forte décroissance de la GMR pour des épaisseurs supérieures à ≅7Å est observée dans tous les systèmes à base de Co. Ainsi la GMR décroit quasi exponentiellement dans Co/Ag[20] au dessus de 6Å de Co.

Les mesures de transport dans le système CoFe(7Å)/Ag présentent tout de même des valeurs intéressantes (Fig III.9):
-L'amplitude de **45%** à température ambiante compte parmi les trois plus fortes observées dans les multicouches. A 4.2K on dépasse même légèrement les **100%**. Comme dans FeNi, c'est le fort terme α qui semble être responsable de cette grande amplitude.

-Les champs de saturation sont nettement plus élevés que dans le système précédent compte tenu de la faible épaisseur de CoFe et de la prédominance de la diffusion interfaciale, qui donne un fort terme de couplage J. Cependant l'échantillon avec 12.4Å d'Ag, sans doute en bord de plateau se sature dans seulement 700 Oe, ce qui lui permet d'atteindre une sensibilité de **0.06%/Oe**, supérieure aux systèmes Co/Cu et Fe/Cr.

-Les valeurs de J calculées à partir des champs de saturation varient de $1.9.10^{-2}$ à 15.10^{-2} erg/cm^2. Elles ne sont qu'environ 5 fois plus grandes que dans FeNi, mais les champs de saturation sont eux 10 fois plus forts à cause de la très faible épaisseur de CoFe. Une épaisseur de CoFe utilisable équivalente à celle du FeNi aurait divisé les champs par 4, et ainsi permis d'obtenir une sensibilité remarquable.

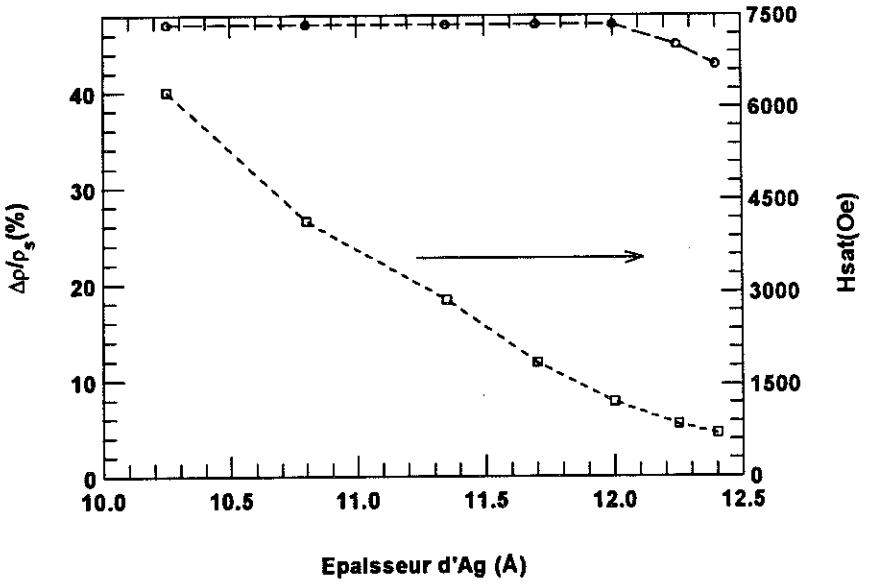


Figure III.9:Amplitudes de GMR et champs de saturation à 300K de la série CoFe/Ag.

Aux basses températures les échantillons de cette série ont des comportements très variés et parfois très insolites. Alors que l'échantillon avec 10.25Å d'Ag présente un

comportement classique (augmentation de l'amplitude de GMR et du champ de saturation) lorsqu'on baisse la température (fig III.10.b), l'échantillon avec 12.4Å voit son amplitude de GMR décroître au dessous de 200K! (fig III.10.a). A 4.2K on ne relève plus que 15% contre 45% à 300K. La forme des courbes au dessous de 200K indique clairement l'existence de **deux régimes**: un en champ faible où la courbure est positive et un à plus fort champ qui se superpose au régime classique. L'interprétation d'un tel phénomène fait intervenir la grande rugosité de cette série de multicouche; qui introduit des couplages inhomogènes, et la forte dépendance thermique de B. Cet échantillon étant dans une zone de faible couplage, on doit envisager, vu la forte rugosité, la coexistence de zones couplées F (minoritaires et qui ne contribuent pas à la GMR) et AF. Au dessous de 200K dans les zones de plus faibles couplages, le terme B parvient à dominer et crée le régime à faible champ (la courbure positive étant liée à des couplages biquadratiques dominants comme nous le verrons dans le prochain chapitre). Les autres régions restent couplées AF et assurent le second régime classique. A très basse température B domine pratiquement dans tout l'échantillon, si bien qu'on ne distingue plus qu'un seul régime et que la GMR est désormais très faible.

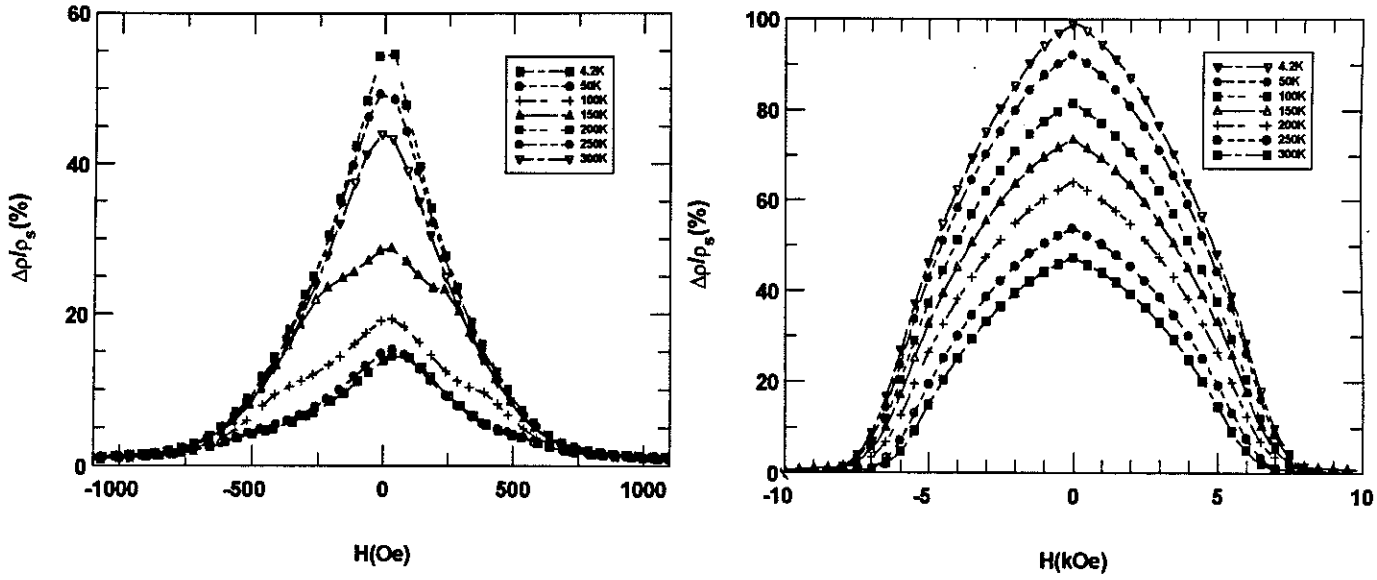


Figure III.10: Magnéto-résistance à températures variables. (a) 12.4Å d'Ag (b) 10.25Å d'Ag.

Remarques:

1)Dans la série Ag/FeNi, contrairement à celle ci, les états non colinéaires sont homogènes à travers tout l'échantillon, évitant l'apparition de deux régimes distincts.

2)Le renforcement de l'inhomogénéité des configurations magnétiques lorsqu'on baisse la température influe fortement sur les diffusions dépendantes du spin. A basse température le

lpm se trouve ainsi artificiellement réduit, ce qui contribue aussi à la faible amplitude de GMR observée.
3)Un comportement similaire à celui que nous venons de décrire a été observé par Dinia et Ounadjela dans une multicouche Co/Ru pour une épaisseur de 12Å de Ru, qui correspond à la limite du couplage AF[21].

III.B.2.Détermination des lpm par le modèle quantique.

Le modèle quantique de conductivité dans les multicouches, présenté succintement dans le premier chapitre et détaillé dans l'article de Zhang et al[22], permet de calculer les lpm dans les configurations F et AF, à partir des valeurs de résistivités correspondantes. Dans ce paragraphe, nous allons l'utiliser dans le cas des multicouches Ag/CoFe pour estimer les lpm et tester leur ordre de grandeur par rapport au modèle phénomènologique régissant la GMR.
Seules les étapes importantes pour la détermination des lpm sont présentées, pour le calcul complet nous renvoyons le lecteur à l'article de Zhang. L'équation (11) du ch I, nous permet d'écrire les expressions des résistivités $\rho_F=\rho(\theta=0)$ et $\rho_{AF}=\rho(\theta=\pi/2)$:

$$\rho_{AF} = \frac{mv_F}{ne^2}\left(\frac{1+\frac{a}{a+b}p^2}{\lambda_m}+\frac{2(1+p^2)}{(a+b)\lambda_i'}\right)$$

$$\rho_F = \frac{mv_F}{ne^2}\left[\left(\frac{1+\frac{a}{a+b}p^2}{\lambda_m}+\frac{2(1+p^2)}{(a+b)\lambda_i'}\right)-\frac{\frac{4p^2}{(a+b)^2}\left(\frac{a}{\lambda_m}+\frac{2}{\lambda_i'}\right)^2}{\frac{1+\frac{a}{a+b}p^2}{\lambda_m}+\frac{2(1+p^2)}{(a+b)\lambda_i'}}\right]$$

où $\lambda_m = a_0 v_F \tau_m = \frac{a_0 v_F}{\omega_m}$ et $\lambda_i' = \frac{v_F}{\omega_i}$ sont les lpm dans le volume et à l'interface.
a et b sont respectivement les épaisseurs des couches magnétiques et non magnétiques.
p est le rapport des diffusions dépendantes et indépendantes du spin. Aux vu des calculs de bandes de Schwarz dans les alliages CoFe, il apparait que le terme α dans $Co_{70}Fe_{30}$ est très proche de celui du Co pur. Nous fixerons donc α à 12 ce qui donne $p=(\sqrt{\alpha}-1)/(\sqrt{\alpha}+1)=0.55$.

La résolution de ces deux équations est aisée si l'on peut calculer le terme mv_F/ne^2. En utilisant l'approximation des électrons libres, et en réduisant arbitrairement la vitesse de Fermi de 10% pour tenir compte de la non sphéricité de la surface de Fermi, nous pouvons estimer ce terme de la façon suivante:
$mv_F / ne^2 = \hbar k_F / ne^2 * v_F^2 = 8.39\ 10^{-6}\ \mu\Omega cm^2$

avec $k_F=0.9*(12\pi^2)^{1/3} / a_0 = 1.2\ 10^{10}\ m^{-1}$ (a_0= 3.65Å pour $Co_{70}Fe_{30}$).

$n = k_F^3 / (3\pi^2) = 5.92\ 10^{28}\ m^{-3}$

$v_F=\hbar k_F / m = 1.39\ 10^6$ m/s.

La connaissance de λ_m et λ'_i permet ensuite de calculer les lpm pour chaque spin σ dans les deux configurations F et AF car:

$$\frac{1}{\lambda^\sigma} = \frac{1}{\lambda_m^\sigma} + \frac{1}{\lambda_i^\sigma}$$

$$\text{avec} \begin{cases} \lambda_m^\sigma = \dfrac{\lambda_m}{1+\dfrac{a}{a+b}\left(p^2+2\sigma p\cos\theta\right)} \\ \lambda_i^\sigma = \dfrac{(a+b)\lambda'_i}{2\left(1+p^2+2\sigma p\cos\theta\right)} \end{cases}$$

Dans la configuration AF les lpm sont identiques quelque soit le spin donc:

$$\frac{1}{\lambda_{AF}^\uparrow} = \frac{1}{\lambda_{AF}^\downarrow} = \frac{1+\dfrac{a}{a+b}p^2}{\lambda_m} + \frac{2\left(1+p^2\right)}{(a+b)\lambda'_i}$$

En configuration F par contre les lpm sont très différents.

$$\frac{1}{\lambda_F^\uparrow} = \frac{1+\dfrac{a}{a+b}\left(p^2+2p\right)}{\lambda_m} + \frac{2\left(1+p^2+2p\right)}{(a+b)\lambda'_i}$$

$$\frac{1}{\lambda_F^\downarrow} = \frac{1+\dfrac{a}{a+b}\left(p^2-2p\right)}{\lambda_m} + \frac{2\left(1+p^2-2p\right)}{(a+b)\lambda'_i}$$

Ce modèle est valable à basse température où la résistivité de phonons est négligeable. Pour nos mesures à 300K, nous avons donc estimé la contribution de phonon dans chaque échantillon (comme la différence de résistivité à saturation entre 300K et 4K) pour la soustraire aux valeurs de résistivités. Les résultats des ajustements sur la série sont rassemblés dans le tableau III.6.

a(Å)	b(Å)	ρ_{AF}-ρ_{Ph}($\mu\Omega$cm)	ρ_F-ρ_{Ph}($\mu\Omega$cm)	λ_m(Å)	λ'_i(Å)	λ_{AF}(Å)	$\lambda^{\uparrow}_F$(Å)	$\lambda^{\downarrow}_F$(Å)
7.1	**12.4**	**26.21**	**16.55**	**72.4**	**8.4**	**29.37**	**17.98**	**80.16**
7.05	**12.25**	**27.01**	**16.78**	**72.67**	**7.98**	**28.6**	**17.43**	**79.42**
7	**12**	**27.69**	**16.91**	**73.26**	**7.68**	**28.1**	**17.07**	**79.15**
6.9	**11.7**	**28.34**	**17.35**	**70.91**	**7.74**	**27.8**	**16.95**	**77.4**
6.8	**11.35**	**29.58**	**18.19**	**66.87**	**7.71**	**27**	**16.54**	**73.94**
6.6	**10.8**	**30.14**	**18.57**	**64.86**	**7.99**	**27.17**	**16.7**	**72.8**
6.4	**10.25**	**30.94**	**19.12**	**62.25**	**8.25**	**27**	**16.7**	**71**

Tableau III.6: Résultats des ajustements des résistivités à 300K..

Les résultats obtenus avec ce modèle, malgré les incertitudes sur les calculs de k_F et de la contribution de phonon, semblent très cohérents avec le principe de GMR, en effet:

-Les valeurs de λ_{AF} sont dans tous les cas inférieures à la maille magnétique T=2(a+b); ce qui signifie que chaque spin est bien diffusé dans l'une des deux couches magnétiques.

-Après saturation, un des deux lpm ($\lambda^{\downarrow}$) est beaucoup plus important que l'autre, puisqu'il est supérieur à deux mailles magnétiques, ce qui montre bien l'effet de court circuit. Le lpm $\lambda^{\uparrow}$ est quant à lui inférieur à a+b, ces électrons sont donc diffusés dans toutes les couches magnétiques. Dans tous les cas on vérifie l'inégalité $\lambda^{\uparrow}_F<\lambda_{AF}<\lambda^{\downarrow}_F$.

-La comparaison de nos résultats avec ceux obtenus dans Fe/Cr[22], montre de grands écarts, puisque nos valeurs sont beaucoup plus fortes que les leurs. Il semble d'après nos simulations que ces différences soient principalement imputables aux très fortes valeurs de résistivité et aux grandes épaisseurs de leurs couches.

-Les contributions du volume et de l'interface que l'on estime à partir de λ_m et λ_i sont à peu près équivalentes puisque $\lambda_m\cong$67Å et $\lambda_i=(a+b)/2*\lambda'_i\cong$73Å. Les expériences attribuent souvent la GMR à l'une ou l'autre contribution selon les systèmes, mais ici elles contribuent de la même façon. Cette observation également valable dans Fe/Cr, nous pousse à dire qu'elle pourrait être plus inhérente au modèle développé qu'aux systèmes envisagés.

En résumé ce modèle est bien cohérent avec le principe de GMR, puisqu'il vérifie bien les hypothèses de variation du lpm dépendant du spin. Les valeurs des lpm calculées sont cohérentes avec le système réel, mais la question de la prépondérance de la diffusion en volume ou à l'interface n'a pu être élucidé car le modèle ne semble pas capable de distinguer l'une ou l'autre.

Remarque: Ce modèle n'a pu être utilisé dans le système Ag/FeNi car il ne donne des résultats physiquement convenables que lorsque l'amplitude de GMR est très importante (>40%). Au dessous le système ne parvient pas à converger vers une solution unique.

IV. TENUE THERMIQUE DES MULTICOUCHES Ag/FeNi.

Les multicouches Ag/FeNi possédant de bonnes caractéristiques de transport à 300K, nous avons étudié l'influence des traitements thermiques en vue d'un éventuel développement technologique. En effet, la fabrication de têtes de lecture/écriture intégrées nécessite un grand nombre d'étapes dont certaines à haute température (250°C). Pour simuler ces étapes, nous avons recuit nos échantillons sous un vide de 10^{-5} torr pendant 10 min à diverses températures entre 25°C et 340°C.
Selon les épaisseurs d'Ag les tenues thermiques sont très variées (cf fig III.11). Certains échantillons se dégradent dès l'ambiante (12.4Å) alors que d'autres s'amèliorent parfois jusqu'à 260°C (11Å).

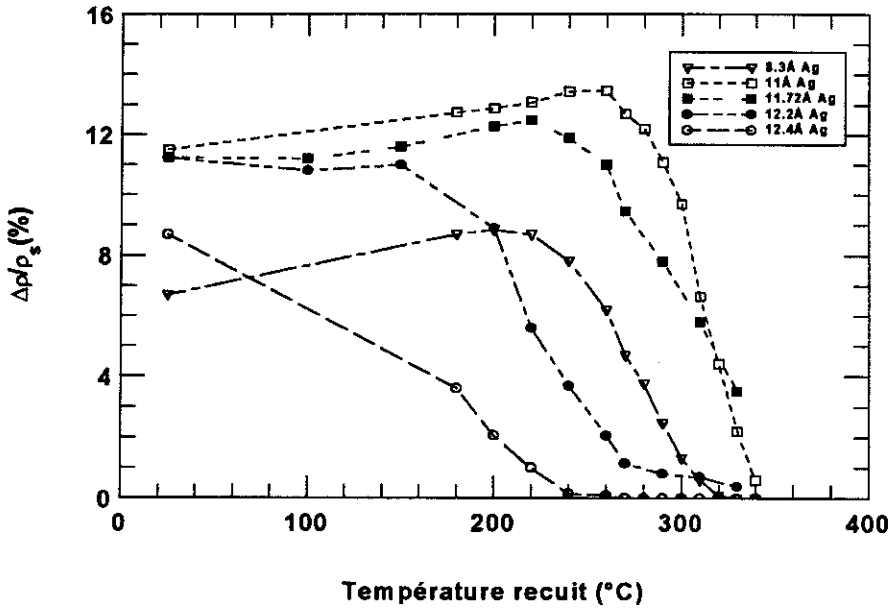


Figure III.11: Evolution thermique de la GMR dans le système Ag/FeNi. Mesures à 300K.

L'explication de cette grande diversité de comportement est liée aux modifications structurales qui s'opérent lors des recuits.
Deux modifications structurales importantes sont à considérer:
- Une densification des couches, qui réduit le nombre de défauts et abaisse donc la résistivité résiduelle

- Une démixion du FeNi et de l'Ag au niveau des interfaces, qui a pour effet d'augmenter légérement l'épaisseur minimale d'Ag entre couches et d'éliminer la rugosité.

Au niveau des propriétés magnétiques, ces modifications vont avoir de fortes répercussions. L'augmentation des épaisseurs d'Ag va, en effet, provoquer des variations du couplage inter-couche, qui selon les échantillons vont permettre au terme biquadratique de jouer un rôle plus ou moins important.

- L'échantillon avec 8.3Å d'Ag, qui présente des aimantations non colinéaires à 300K, va évoluer vers une configuration plus antiparallèle car le terme RKKY en se renforçant (fig III.7) réduit l'influence de B. La résistivité magnétique (ρ_{Hsat} - $\rho_{H=0}$) qui augmente jusqu'aux alentours de 220°C contribue au même titre que la réduction de la résistivité résiduelle à l'amélioration de la GMR. Au delà de cette température l'échantillon va se déstratifier (fig III.12), provoquant l'apparition de ponts ferromagnétiques qui réduisent rapidement le couplage (Cf fig III.13) et la GMR.

- Pour les échantillons purement antiparallèles (11 et 11.72Å), le recuit jusqu'à haute température (250°C) influe principalement en diminuant le champ de saturation. La GMR augmente quant à elle, simplement grâce à la réduction de la résiduelle. Ces deux évolutions inverses améliorent considérablement les sensibilités de ces couches, leur permettant d'atteindre respectivement 0.09%/Oe et 0.13%/Oe à 250°C. Au dessus de 250°C le même effet de déstratification que pour l'échantillon précédent se met en place.

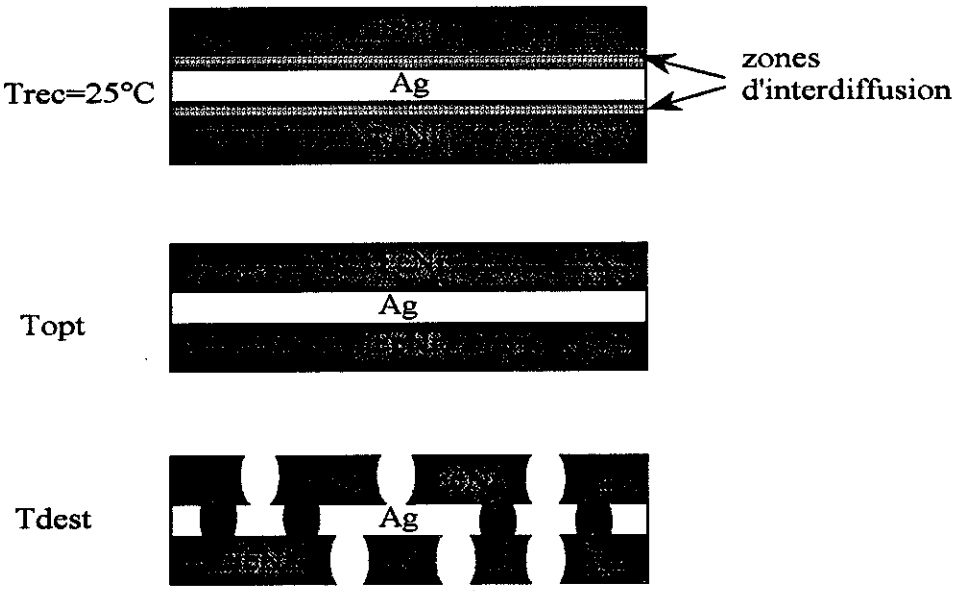


Figure III.12: Evolution schématique de la structure des multicouches lors des recuits. Topt est la température optimale et Tdest est la température de déstratification.

- Enfin les deux échantillons les plus épais subissent le contre-coup de leur faible couplage inter-couche (qui les favorisait avant recuit). Dès les premiers recuits, le terme biquadratique entre en compétition avec J et referme l'angle entre les aimantations. La résistivité magnétique chute alors rapidement et ne peut être compensée par la diminution de la résiduelle, pour maintenir l'amplitude de GMR. La sensibilité s'écroule tout aussi rapidement, éliminant ces échantillons pour un développement futur.

Remarques:

1)Cette chute de GMR pourrait aussi s'interpréter comme une déstratification précoce, mais rien de tel n'a été observé aux RX. La structure des multicouches est parfaitement conservée jusqu'à 280°C.

2)Nous verrons dans le chapitre suivant que la perte de couplage si elle est bien contrôlée peut être avantageusement utilisée pour le développement de système à fortes sensibilités.

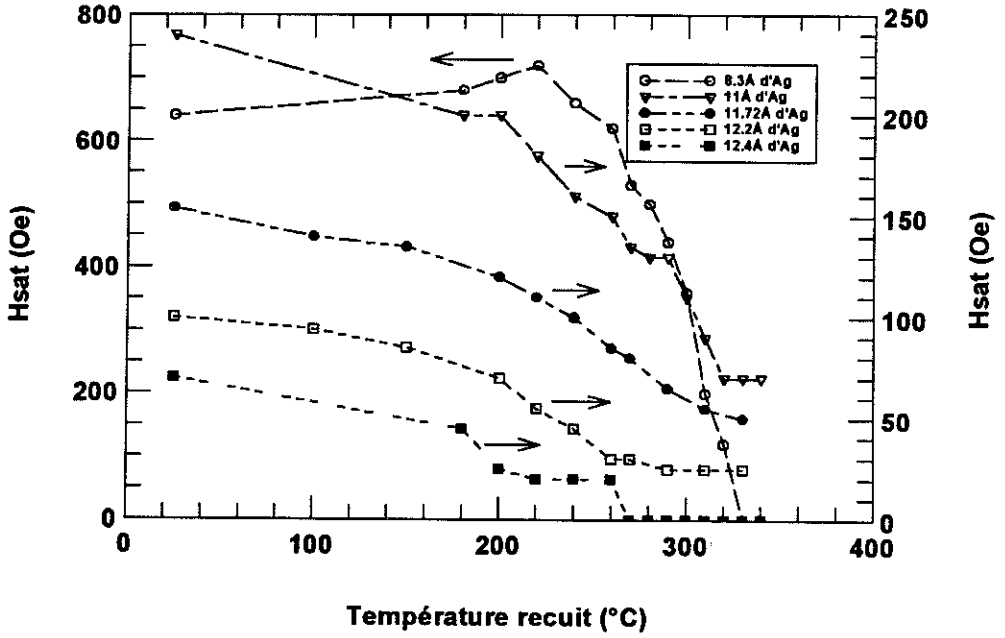
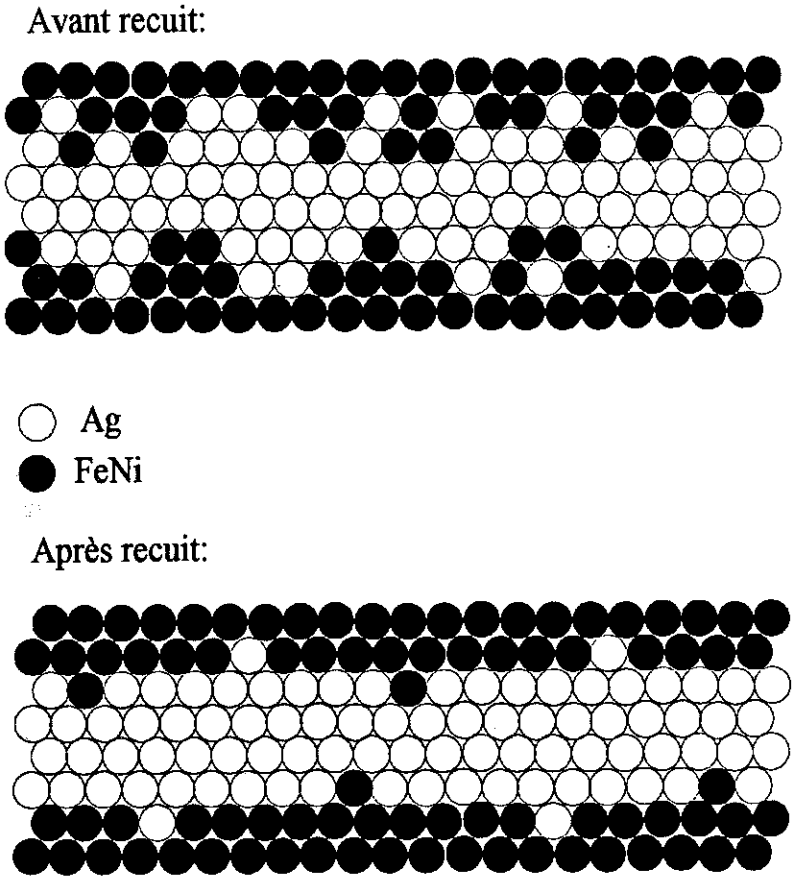


Figure III.13: Evolution des champs de saturation avec le recuit dans Ag/FeNi. Mesure à 300K.

L'évolution des champs de saturation pour les échantillons purement A.F., jusqu'à la température de déstratification nous permet d'estimer l'importance de la démixion en termes de variation d'épaisseur d'Ag. En moyenne, on observe une réduction de 100 Oe, équivalent à une variation d'épaisseur d'Ag (d'après la figure III.7) de l'ordre de 1Å (environ ½ couche atomique). Si on imagine la zone d'interdiffusion étendue aux 2 premières couches atomiques de l'interface (cf figure page suivante) l'épaisseur minimale entre les couches de FeNi est d'environ 3.4 plans atomiques soit bien inférieure à l'épaisseur moyenne d'Ag déposée; le couplage est donc fort. Après recuit le réarrangement atomique éloigne les interfaces de FeNi (3.9 plans atomiques) et réduit le couplage.



Une autre hypothèse, suggérée par C.Chappert pour l'interprétation de la réduction de l'intensité du couplage, fait appel à une modification de la phase de l'oscillation lors du réarrangement atomique, sans invoquer de fluctuations de l'épaisseur moyenne d'Ag. En effet dans le dernier modèle de Bruno[4], il apparaît un terme de phase lors des réflections de l'onde électronique aux interfaces, qui est sensible à la structure de l'interface (rugosité). Il est donc tout à fait vraissemblable que lors du réarrangement atomique les termes de phase soient modifiés, affectant la phase globale de l'oscillation. En considérant une réduction moyenne du champs de saturation de 100Oe près traitement thermique, on peut estimer le décalage de la phase d'oscillation d'environ 30°.

De récentes mesures de Microscopie à Force Atomique sur nos multicouches ont quantifié quelque peu la rugosité dans l'Ag. Les résultats que nous présentons sont à prendre avec précaution car cette technique a été introduite au laboratoire il y a peu de temps et son maniement requiert une longue expérience. L'image d'une surface d'Ag de 500Å de coté (Fig III.14) montre une forêt de pics assez dense. Sur chaque coté on dénombre environ 10 pics de rugosité, ce qui donne une taille moyenne des terrasses de 50Å. Cette valeur qui correspond à la taille moyenne des cristallites déterminée par RX en transmission, permet de faire l'hypothèse que la rugosité apparente est le résultat des fluctuations spatiales de la position des cristallites selon l'axe de croissance. La hauteur moyenne des terrasses est estimée à 2.5±1.6Å,

ce qui est bien supérieur à notre estimation par les champs de saturation, mais ce n'est pas forcément contradictoire, car rien ne nous dit qu'au moment de la déstratification les interfaces sont parfaitement plats, nous avons peut être simplement diminué la rugosité sans l'éliminer complétement.

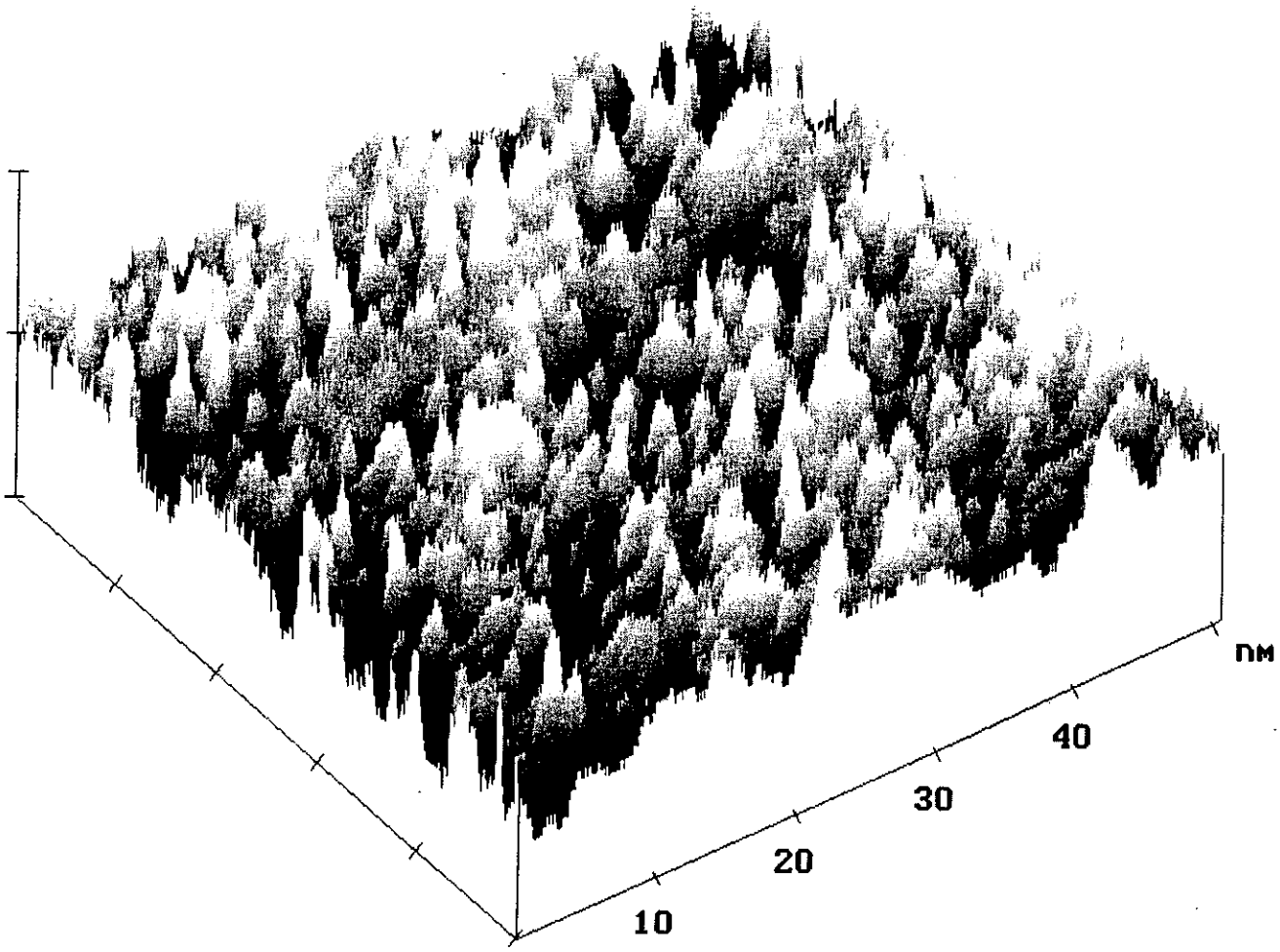


Figure III.14: Image d'une surface d'Ag de 500X500Å obtenue par Microscopie à Force Atomique. Les pics observés ont une largeur moyenne de 50Å et une hauteur de 2.53Å

CONCLUSION

Ce chapitre plutôt expérimental, nous a apporté un grand nombre d'enseignements structuraux et surtout magnétiques sur les multicouches Ag/FeNi et Ag/FeCo, dont il est intéressant de faire le bilan.

- Analyse structurale.

* **Croissance fortement texturée <111>** des trois matériaux déposés.

* Structure **cfc** commune, ce qui est une anomalie pour le $Fe_{30}Co_{70}$, mais qui s'explique par les très faibles épaisseurs de couches, qui sont sûrement sous contraintes.
* **Fort gradient longitudinal** d'épaisseur dans les couches Ag/FeCo à cause de l'utilisation de cibles neuves.
* **Détermination rigoureuse des épaisseurs** de chaque matériau en calibrant les distances inter-planaires par la méthode des échantillons à double période.

• Analyse magnétique.

* Nécessité plusieurs fois démontrée d'introduire un **second terme de couplage** pour une analyse cohérente des données expérimentales des deux systèmes magnétiques.
* Propriétés magnétiques remarquables pour le système **Ag/FeNi**, qui présente un très bon compromis entre une **forte sensibilité** et une **bonne tenue thermique**. Le système **Ag/FeCo** a lui de bonnes caractéristiques de transport avec une **forte amplitude de GMR**, mais la sensibilité est plus faible principalement à cause de la très faible épaisseur de CoFe utilisable.
* Deux modèles ont pu être appliqués avec succès pour l'interprétation des mesures expérimentales et leur corrélation aux paramètres microscopiques:
- Le **modèle de Bruno et Chappert** pour les oscillations du couplage dans Ag/FeNi.
- Le **modèle de Zhang** pour la détermination des lpm dépendant du spin dans le système Ag/CoFe.
* Enfin, l'étude de l'influence du traitement thermique, a permis au LETI de retenir l'échantillon avec 11.72Å d'Ag, qui garde une sensibilité de 0.129%/Oe à 250°C; pour la fabrication de têtes de lecture magnéto-résistives[23]. Mais nous verrons par la suite que les échantillons plus épais, qui ont été rapidement éliminés à cause de l'apparente dégradation des propriétés magnétiques, peuvent atteindre des sensibilités de 0.2 à 0.3%/Oe si on étudie de près le comportement des couplages magnétiques.

BIBLIOGRAPHIE:

[1] S.S.P.Parkin, B.R.York, Appl.Phys.Lett., **62**, (1993), 1842
[2] S.S.P.Parkin, R. Bhadra, K.P.Roche, Phys.Rev.Lett., **66**, (1991), 2152
[3] P.Bruno, C.Chappert, Phys.Rev.Lett., **67**, (1991), 1602, P.Bruno, C.Chappert, Phys.Rev.B, **46**, (1992), 261
[4] P.Bruno, J.Magn.Magn.Mater, **121**, (1993),248; P.Bruno, Phys.Rev.B, Vol **52**, (1995), 411
[5] W.F.Egelhoff Jr, M.T.Kief, I.E.E.E Trans MAG, **MAG 28**, (1992), 2742
[6] F.Petroff, A.Barthélémy, D.H.Mosca, D.K.Lottis, A.Fert, P.A.Schroeder, W.P.Pratt Jr, R.Loloee, Phys.Rev.B, **44**, (1991), 5355
[7] S.S.P.Parkin, R.F.Marks, R.F.C.Farrow, G.R.Harp, Q.H.Lam, R.J.Savoy, Phys.Rev.B, **46**, 9262
[8] K.Schwarz, P.Mohn, P.Blaha, J.Kübler, J.Phys.F: Met.Phys., **14**, (1984), 2659
[9] B.Rodmacq, G.Palumbo, Ph Gerard, J.Magn.Magn.Mater, **118**, (1993), L11
[10] A.Mallon, Thèse , Université Joseph Fourier, (1995)
[11] O.Redon, J.Pierre, B.Rodmacq, B.Mevel, B.Dieny, J.Magn.Magn.Mater, **149**, (1995), 398

[12] B.Rodmacq et al, J.Phys.Condens.Matter, **4**, (1992), 4527
[13] C.Cowache, Thèse, Université Joseph Fourier, (1995)
[14] S.S.P.Parkin, R.F.C.Farrow, R.F.Marks, A.Cebollada, G.R.Harp, R.J.Savoy, Phys.Rev.Lett., **72**, (1994), 3718
[15] X.Bian, J.O.Ström-Olsen, Z.Altounian, Y.Huai, R.W.Cochrane, Appl.Phys.Lett., **62**, (1993), 3525
[16] V.Grolier, D.Renard, B.Bartenlian, P.Beauvillain, C.Chappert, C.Dupas, J.Ferré, M.Galtier, E.Kolb, M.Mulloy, J.P.Renard, P.Veillet, Phys.Rev.Lett., **71**, (1993), 3023
[17] S.Auffret, Thèse, Université Joseph Fourier, (1992)
[18] A.Schuhl,F.Nguyen Van Dau, J.R.Childress, Appl.Phys.Lett., **66**, (1995), 2751
J.Smits, Physics World, Nov 1992, 48
[19] M.R.Parker, S.Hossain, D.Seale, J.A.Barnard, M.Tan, H.Fujiwara, I.E.E.E Trans.Magn, **30**,(1994), 358
[20] S.Araki, J.Appl.Phys, **73**, (1993), 3910
[21] A.Dinia, K.Ounadjela, J.Magn.Magn.Mater., **146**, (1995), 66
[22] P.M.Levy, S.Zhang, A.Fert, Phys.Rev.Lett., **65**, (1990), 1643
[23] J.Mouchot, P.Gérard, B.Rodmacq, IEEE Trans.MAG., **29**, (1993), 2732

CHAPITRE IV

COUPLAGES BILINEAIRES ET BIQUADRATIQUES DANS LES SYSTEMES Ag/FeNi ET Ag/FeCo.

INTRODUCTION.....85

I. LES ORIGINES DU COUPLAGE BIQUADRATIQUE.....85

II. MODELE ANALYTIQUE DE GMR AVEC COUPLAGE BIQUADRATIQUE.....89
- II.A. Présentation du modèle.....89
- II.B. Influence du couplage biquadratique sur les propriétés magnétiques.....91

III. EVIDENCE D'UN TERME BIQUADRATIQUE DANS LES SYSTEMES Ag/FeNi ET Ag/FeCo.....93

IV. MODELE DES « PIN-HOLES » AUX FAIBLES EPAISSEURS D'Ag.....99
- IV.A. Modèle et analyse des courbes d'aimantation.....99
- IV.B. Modification de l'oscillation du terme bilinéaire.....102

V. MODELE DE SPINS INDEPENDANTS OU STRUCTURE EN DOMAINES AUX FORTES EPAISSEURS D'Ag.....104
- V.A. Apparition d'états non colinéaires aux basses températures.....104
- V.B. Loi de dépendance thermique des termes de couplages.....109
- V.C. Des impurteés à l'origine de B.....114
- V.D. ou une structure en domaines.....116

VI. OPTIMISATION DE LA STRUCTURE MAGNETIQUE POUR DES CAPTEURS A FORTE SENSIBILITE.....118

CONCLUSION.....123

INTRODUCTION

La première mise en évidence expérimentale de l'existence d'un terme biquadratique remonte à 1991 dans le système tricouche Fe/Cr/Fe, [1] par l'équipe de Rührig. Ils ont observé un comportement particulier des courbes d'aimantation qui présentaient un plateau à Ms/2, dans les zones où le couplage bilinéaire disparaissait. Ce plateau était le signe de moments à 90°, l'un des deux étant orienté selon l'axe du champ magnétique. Lorsque l'énergie Zeeman surpassait l'énergie du couplage biquadratique et la barrière d'anisotropie, les moments se refermaient, permettant de retrouver la totalité de l'aimantation. De nombreuses autres évidences de ce couplage ont par la suite été rapportées dans les systèmes Fe/(Au,Al)/Fe [2]. Dans tous ces systèmes c'est seulement la configuration orthogonale des aimantations qui est apparue, mais il peut exister toute une plage d'angles entre les aimantations selon l'intensité relative des deux termes de couplage.
Nous allons voir dans ce chapitre que la Magnéto-Résistance, comme l'aimantation est très sensible au terme biquadratique. L'analyse des ces différents comportements magnétiques par un modèle incluant les deux termes de couplage, nous permettra d'observer l'émergence d'états non colinéaires à 300K non orthogonaux dans les zones de faible couplage bilinéaire, mais aussi à basse température dans des zones à forts couplages, grâce à la forte dépendance thermique du terme B. La recherche d'une origine compréhensible pour ce terme biquadratique nous amènera à des mécanismes parfois bien différents de ceux proposés dans la littérature...

I. LES ORIGINES DU COUPLAGE BIQUADRATIQUE.

De nombreux modèles ont tenté de trouver une origine physique microscopique à ce terme de type non Heisenberg. Leur analyse permet de dégager deux grandes tendances: Les uns privilégient une origine intrinséque, alors que les autres préfèrent l'associer à des mécanismes plus structuraux liés à la rugosité ou à des défauts magnétiques.

***Mécanismes intrinséques:**
Le terme biquadratique (B) qui apparait dans le développement de l'énergie d'échange, ne peut selon certains auteurs[3] être la cause de l'apparition d'états non colinéaires pour deux raisons:
-Son intensité est trop faible (10^{-3}J) pour modifier l'effet du couplage bilinéaire.
-Sa décroissance avec l'épaisseur de couche non magnétique est bien trop rapide par rapport aux observations expérimentales.
De nouvelles théories[4] ont cependant réussi à réajuster les valeurs relatives des deux termes de couplage et prédisent un caractère oscillant fortement atténué du terme B avec une période moitié de celle de J. Malheureusement au niveau des noeuds de l'oscillation de J le couplage B est nul, il n'apparait donc pas de configurations où le couplage biquadratique domine, si bien qu'il est difficile d'expliquer les états non colinéaires. Certains auteurs y parviennent tout de même en ajoutant une contribution B constante due à la compétition au sein même de la

couche magnétique du couplage J (la polarisation électronique pénétrant assez profondément dans la couche) et des couplages intra-couche...

Dans certains systèmes les oscillations du couplage s'étendent sur de grandes épaisseurs; on peut donc imaginer qu'il subsiste un couplage entre « couches deuxièmes voisines ». Si son signe est opposé au couplage entre « couches premières voisines », la perturbation qu'il engendre peut être la source des configurations non colinéaires des aimantations (analogie avec les structures hélimagnétiques). Malheureusement, dans Ag/FeNi, le couplage est limité aux seules premières couches voisines à cause du fort terme d'atténuation. Au delà de 25Å, tout couplage disparait et les secondes voisines sont à près de 50Å, on ne peut donc envisager cette solution.

***modèles structuraux:**
Trois mécanismes plus structuraux, faisant intervenir la rugosité des interfaces, où la possibilités de spins «indépendants» ont proposés des solutions intéressantes pour l'interprétation du terme biquadratique dans les systèmes Fe/Cr/Fe ou Fe/Al/Fe.

Le premier, développé par Slonczewski[5], considère que le terme biquadratique émerge des **fluctuations spatiales du terme bilinéaire**, causées par la présence de terrasses aux interfaces. L'amplitude de ce couplage supplémentaire prend alors la forme:

$$B = \frac{-4(\Delta J)^2 L}{\pi^3 A} coth\left(\frac{\pi D}{L}\right) \qquad (1)$$

Où L est la largeur des terrasses, A est la constante de rigidité du matériau non magnétique ($A=10^{-6}$ erg/cm dans FeNi), D est l'épaisseur de la couche magnétique et ΔJ est la variation du couplage bilinéaire sur l'épaisseur d'une terrasse.
Dans les systèmes étudiés comme Fe/Cr/Fe<100>, deux périodes d'oscillation distinctes ont pu être mises en évidence[6]. L'oscillation à courte période, d'environ deux monocouches posséde une intensité de couplage équivalente à celle du couplage à longue période au premier pic A.F. C'est elle qui va être responsable des fortes variations de couplage (ΔJ) au niveau des terrasses, et provoquer localement l'apparition de couplages ferromagnétiques. La compétition entre ces divers couplages (F et A.F.) et la constante de rigidité de la couche magnétique qui interdit de fortes désorientations entre moments adjacents, va stabiliser une configuration nouvelle avec des moments non colinéaires entre couches magnétiques adjacentes.
Ce modèle semble difficilement adaptable à nos systèmes pour la simple raison que nous avons une direction de croissance <111> qui n'autorise qu'une seule période d'oscillation à longue période; la variation de ΔJ sera donc plus limitée. Pour s'en convaincre nous pouvons mener un rapide calcul avec les paramètres du chapitre précédent: Considérons des terrasses de largeur ≅50Å (d'après les RX) et de hauteur (rugosité) 2.5Å, qui correspond à la mesure d'AFM. Cette valeur très proche du paramètre de maille de l'Ag, nous permet de faire

l'hypothèse d'une rugosité égale à une couche atomique. Sur cette variation d'épaisseur ΔJ décrit toute l'amplitude du pic dans le meilleur des cas (J=0) soit 0.03 erg/cm^2=ΔJ. Pour une couche de 26Å de FeNi la résolution de l'éq (1) nous donne B=6.10^{-5} erg/cm^2 soit 1/100 de la valeur expérimentale. Pour atteindre la valeur minimale observée expérimentalement il faudrait considérer des terrasses d'environ 400Å, soit bien plus encore que les observations MET. D'autre part on comprend assez mal comment en ayant des défauts de plus en plus éloignés (donc une structure de plus en plus parfaite) le terme biquadratique peut se renforcer!

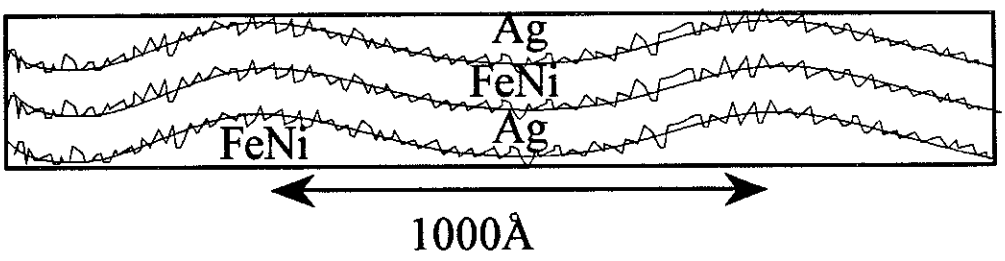
Le second modèle[7] invoque plutôt un mécanisme de **champs dipolaires** pour introduire le couplage biquadratique. En effet les surfaces libres créées par les terrasses sont propices à l'apparition de champs dipolaires à travers la couche d'Ag. La couche magnétique suivante peut, selon sa distance et l'intensité du couplage A.F., être affectée par ce champ interne au point de voir son aimantation basculer hors du plan. Pour de très faibles épaisseurs d'Ag, le champ dipolaire est suffisamment fort pour contrebalancer le couplage A.F, par contre aux plus fortes épaisseurs il ne peut agir que si le couplage est fortement affaibli.

Le terme biquadratique est dans ce cas le reflet de l'ensemble des champs dipôlaires créés par tout le réseau de terrasses. En considérant une rugosité sur chaque interface des couches magnétiques, Demokritov a obtenu la forme suivante pour le couplage B:

$$B = \frac{1}{\pi}\frac{M^4\delta^2 L}{\tilde{A}}\exp\left(-\frac{4\pi d}{L}\right)\left\{1-\exp\left(-\frac{8\pi D}{L}\right)\right\} \qquad (2)$$

où δ est la hauteur de marche, L est la période des terrasses, $\tilde{A}=A+K_1L^2/2\pi^2$ (K_1=constante d'anisotropie magnétocristalline et A=constante de rigidité), d est l'épaisseur de la couche d'Ag, et D est l'épaisseur de la couche magnétique.

En considérant une fois de plus les paramètres du Ch.III on calcule avec l'éq (2) un terme B à nouveau 100 fois trop faible! Néanmoins, de récentes simulations de l'amplitude des franges de Kiessig observées en réflectivité de RX aux très petits angles (θ=0.5 à 1.5°) intègrent une rugosité de grande amplitude de l'ordre de 5Å et plus. Cette forte rugosité n'affecte pas forcement l'épaisseur moyenne d'Ag, il faut plutôt la voir à une plus grande échelle comme une « tôle ondulée » à grande longueur d'onde (plusieurs centaines d'Angströms) modulée par la rugosité aléatoire due aux désalignements des cristallites le long de l'axe de croissance (voir dessin ci-dessous).



En modélisant les grandes modulations par des terrasses de période L=1000Å et d'amplitude δ=5Å, on obtient une intensité de B comparable à celle de J, mais qui varie peu et lentement avec l'épaisseur d'Ag (Fig IV.1).

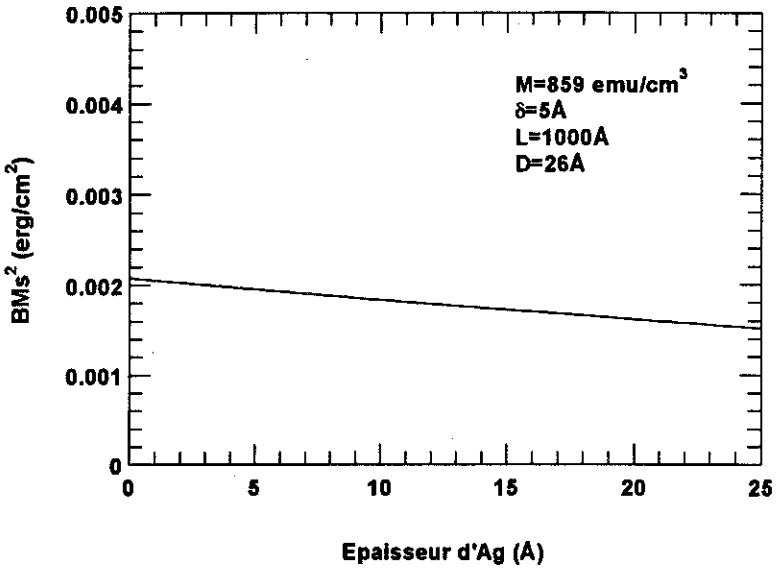


Figure IV.1: Amplitude du couplage biquadratique d'après le modèle de Demokritov, adaptée aux paramètres de notre système Ag/FeNi.

Le dernier mécanisme envisagé par Slonczewski[8] pour pallier les problèmes des trop faibles dépendances thermiques de B associée à son modèle de fluctuation, introduit l'existence **d'atomes magnétiques « indépendants »** au sein de la couche non magnétique ou aux interfaces entre couches magnétiques et non magnétiques. Ces spins indépendants (loose spins en anglais) en interactions indirectes avec chaque couche magnétique seraient responsables du terme biquadratique. Ce modèle semble bien corréler les dépendances thermiques de B dans les systèmes Fe/Al ou Fe/Au, mais sa validité doit être encore éprouvée car les fluctuations thermiques de ces spins d'interface doivent être fortement diffusantes et devraient donc profondément affecter le couplage J et la conductivité électrique...

La recherche d'une origine physique pour le terme biquadratique n'est pas du tout aisée, puisqu'après avoir passé en revue cinq modèles différents, nous ne parvenons pas à réellement dégager un mécanisme satisfaisant. L'étude expérimentale de Rührig nous donne tout de même deux précieux renseignements sur les variations de B:

1) Le couplage biquadratique n'est sensible qu'au niveau des zéros de l'oscillation du terme bilinéaire et n'a d'influence que sur une très étroite gamme d'épaisseur de la couche non magnétique.

2) Son amplitude décroit grossièrement comme celle du terme bilinéaire, mais ne présente pas d'évidence d'une oscillation.

II. MODELE ANALYTIQUE DE GMR AVEC COUPLAGE BIQUADRATIQUE.

II.A. Présentation du modèle.

Le modèle que nous allons présenter a été développé par Fujiwara et Parker[9] pour l'étude qualitative de l'influence du couplage biquadratique sur la forme des caractéristiques de GMR et d'aimantation. Il est basé essentiellement sur une extension de la théorie de Stoner-Wohlfarth, en introduisant un terme supplémentaire du 4éme ordre dans l'énergie du système. Les résultats de leur étude reflétent l'importance du terme biquadratique qui autorise la description de caractéristiques non paraboliques de la MR observées dans les systèmes à faibles champs de saturation comme Ag/FeNi, Ag/FeCo ou Cu/NiFeCo.

Considérons deux couches magnétiques d'épaisseur t, possédant une même anisotropie planaire uniaxiale (Ku) et dont les aimantations M_1 et M_2 font un angle θ_1 et θ_2 par rapport à un axe facile supposé commun (Fig IV.2).

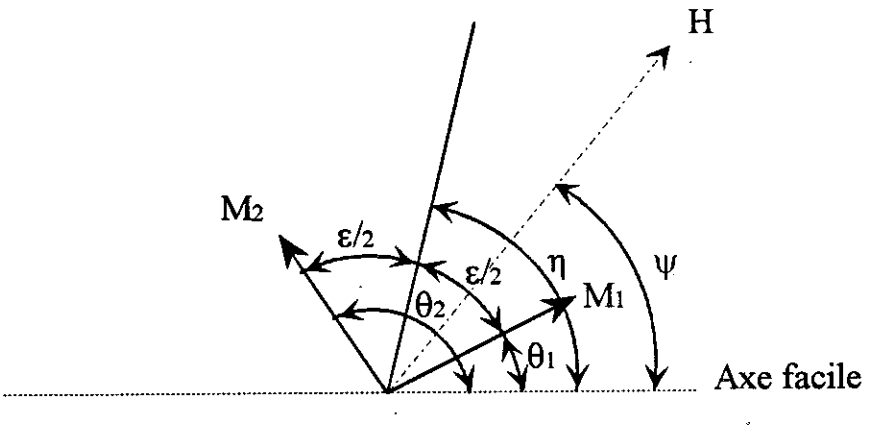


Figure IV.2: Orientation relative des moments et du champ magnétique.

Dans ce système de coordonnées l'énergie par unité de volume s'écrit:

$$E(\theta_1,\theta_2) = Ku(\sin^2\theta_1+\sin^2\theta_2)+\frac{JMs^2}{t}\cos(\theta_1-\theta_2)+\frac{BMs^2}{t}\cos^2(\theta_2-\theta_1) \qquad (3)$$
$$-MsH[\cos(\psi-\theta_1)+\cos(\psi-\theta_2)]$$

J et B sont respectivement les termes de couplage bilinéaire et biquadratique, ils sont tous deux positifs et minimisent l'énergie pour des aimantations à 180° (J) et 90° (B). On peut réécrire l'eq (3) en terme de champs et en transformant les variables (θ_1, θ_2) en variables indépendantes (ε et η) avec:

$$\varepsilon=\theta_2-\theta_1 \text{ et } \eta=(\theta_1+\theta_2)/2$$

$$e(\varepsilon,\eta)=\frac{E}{Ms}=2\frac{Ku}{Ms}\left[\sin^2\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)\cos^2\eta+\cos^2\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)\sin^2\eta\right]+\frac{JMs^2}{Mst}\cos\varepsilon+\frac{BMs^2}{Mst}\cos^2\varepsilon$$
$$-2H\cos\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)\cos(\psi-\eta) \qquad (4)$$

Les dérivées partielles par rapport à ε et η nous donnent les conditions d'équilibre suivantes:

$$\begin{cases}\dfrac{\partial e}{\partial\varepsilon}=\dfrac{Ku}{Ms}\sin\varepsilon\cos2\eta-\dfrac{JMs^2}{Mst}\sin\varepsilon-\dfrac{BMs^2}{Mst}\sin2\varepsilon+H\sin\left(\dfrac{\varepsilon}{2}\right)\cos(\psi-\eta)=0\\ \dfrac{\partial e}{\partial\eta}=2\dfrac{Ku}{Ms}\cos\varepsilon\sin2\eta-H\cos\left(\dfrac{\varepsilon}{2}\right)\sin(\psi-\eta)=0\end{cases} \qquad (5)$$

Si le champ magnétique est appliqué suivant l'axe difficile ($\psi=\pi/2$) la dérivée par rapport à η impose $\eta=\pi/2$.
En réinjectant ces valeurs dans la première dérivée partielle, on obtient une relation entre le champ appliqué et les différents termes d'énergie.

$$H=\frac{2}{Mst}\left[\left(Kut+JMs^2-2BMs^2\right)\cos\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)+4BMs^2\cos^3\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)\right] \qquad (6)$$

En champ nul on peut déterminer l'angle initial entre aimantations grâce à la formule précédente:

$$\cos(\varepsilon)=-\left(\frac{JMs^2+Kut}{2BMs^2}\right)$$

Si on se place selon l'axe facile ($\psi=0$) on a $\eta=0$, la relation (6) devient:

$$H=\frac{2}{Mst}\left[\left(-Kut+JMs^2-2BMs^2\right)\cos\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)+4BMs^2\cos^3\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)\right] \qquad (7)$$

de même l'angle ε dérive de: $\cos(\varepsilon)=-\left(\dfrac{JMs^2-Kut}{2BMs^2}\right)$

Les équations (6) et (7) sont les principaux résultats du modèle; elles se réduisent même à une seule équation lorsque l'anisotropie Ku est nulle, ce qui est le cas dans la majorité de nos échantillons. Seul un échantillon a nécessité l'emploi d'un terme d'anisotropie planaire du fait de sa position trés excentrée sur le disque qui crée une anisotropie de dépôt.

Cette relation analytique très simple nous permettra par la suite d'ajuster avec un même jeu de paramètres toutes les mesures magnétiques, à condition d'être capable de les relier au cos(ε/2).

Dans toutes les configurations (transverses ou longitudinales) la minimisation de la dérivée partielle par rapport à η implique η=ψ, ce qui correspond physiquement au basculement sans changement d'angle relatif des aimantations (spin-flip). Le champ magnétique est donc appliqué selon la bissectrice des aimantations M1 et M2, l'aimantation mesurée est simplement la somme de leurs projections sur l'axe du champ magnétique; on a ainsi: M=Ms*cos(ε/2).

La résistance dans les systèmes à GMR présente une dépendance linéaire avec le cosinus de l'angle entre les aimantations,[10] elle est donc souvent décrite par la relation:

$$R(\varepsilon)=Rp+(Rap-Rp)\frac{(1-\cos\varepsilon)}{2}=Rap+(Rp-Rap)\cos^2(\varepsilon/2) \qquad (8)$$

où Rap et Rp sont respectivement les résistances en configuration antiparallèle et parallèle.
En divisant chaque terme par Rp, qui est à priori le même pour tous les échantillons, on peut relier $\cos^2(\varepsilon/2)$ à la GMR:

$$\cos^2\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)=\frac{\frac{(Rap-Rp)}{Rp}-\frac{(R-Rp)}{Rp}}{\frac{Rap-Rp}{Rp}}=\frac{\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{max}-\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{mes}}{\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{max}} \qquad (9)$$

où $\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{max}$ est la **GMR maximum** que l'on peut atteindre à une température donnée et pour des histoires thermiques équivalentes. Elle est définie par la valeur de l'amplitude pour des échantillons purement A.F. (i.e. qui sont sur le plateau de GMR). $\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{mes}$ est la **GMR mesurée** expérimentalement, elle dépend de chaque échantillon, elle permettra selon sa valeur de calculer l'angle d'ouverture entre les aimantations. Cette relation est différente de celle employée par Fujiwara, mais découle plus directement de l'équation (8) communément admise.

II.B. Influence du couplage biquadratique sur les propriétés magnétiques

Avant d'appliquer ce modèle à nos deux séries de multicouches, pour quantifier les intensités respectives de J et B, je voudrais par deux petites simulations montrer toute l'importance du terme biquadratique dans les caractéristiques magnétiques. La première simulation (fig IV.3) ne prend en compte que le couplage inter-couche J, dont les différentes

intensités définissent simplement le champ de saturation sans avoir aucun effet sur l'amplitude (tableau IV.1). La seconde simulation (fig IV.4) montre toutes les modifications introduites par la présence d'un terme biquadratique constant lorsque J devient faible. Les deux simulations ont été calculées pour une couche magnétique de 26Å ayant une aimantation de 859 emu/cm^3.

Simulation 1			Simulation 2		
JMs^2(erg/cm^2)	**BMs^2(erg/cm^2)**	**ε(°)**	**JMs^2(erg/cm^2)**	**BMs^2(erg/cm^2)**	**ε(°)**
0.01	**0**	**180**	**0.01**	**0.002**	**180**
0.02	**0**	**180**	**0.007**	**0.002**	**180**
0.03	**0**	**180**	**0.004**	**0.002**	**180**
0.04	**0**	**180**	**0.001**	**0.002**	**104.5**
0.05	**0**	**180**	**-0.002**	**0.002**	**60**

Tableau IV.1: Valeurs des termes de couplages pour les simulations 1 et 2

Une rapide analyse des simulations permet déjà plusieurs constatations:
1) Le seul couplage bilinéaire ne donne que des caractéristiques de transport paraboliques et des courbes d'aimantation linéaires. Ces formes ne sont pas pour autant abstraites car elles se retrouvent dans certains systèmes réels lorsque le couplage bilinéaire est très fort comparé au biquadratique.

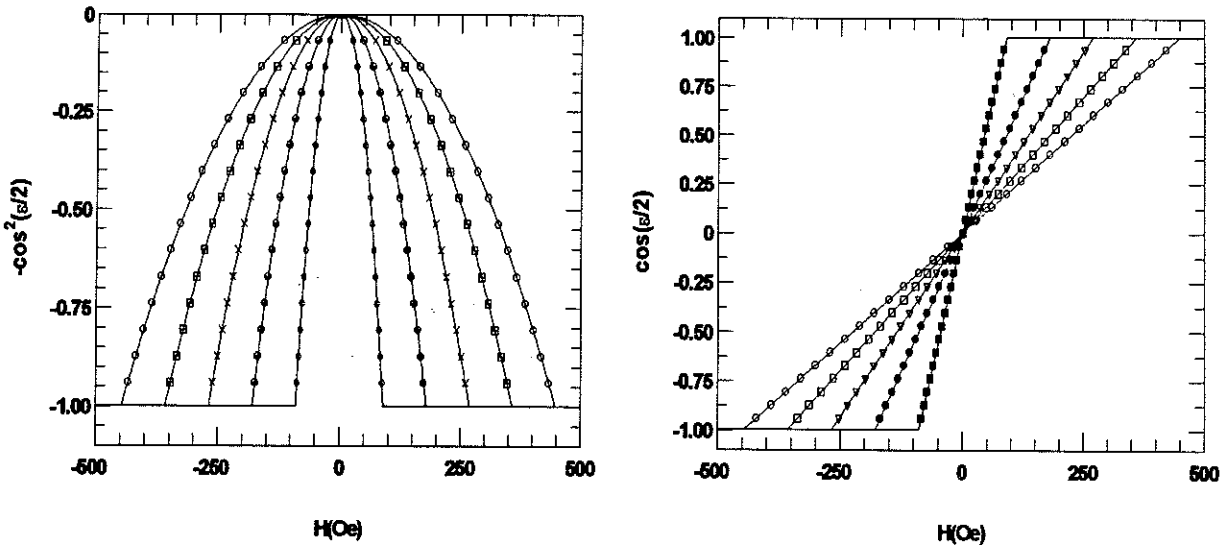


Figure IV.3: Simulation n°1 des caractéristiques de transport (gauche) et d'aimantation (droite). Le terme JMs^2 est croissant du centre vers l'extérieur.

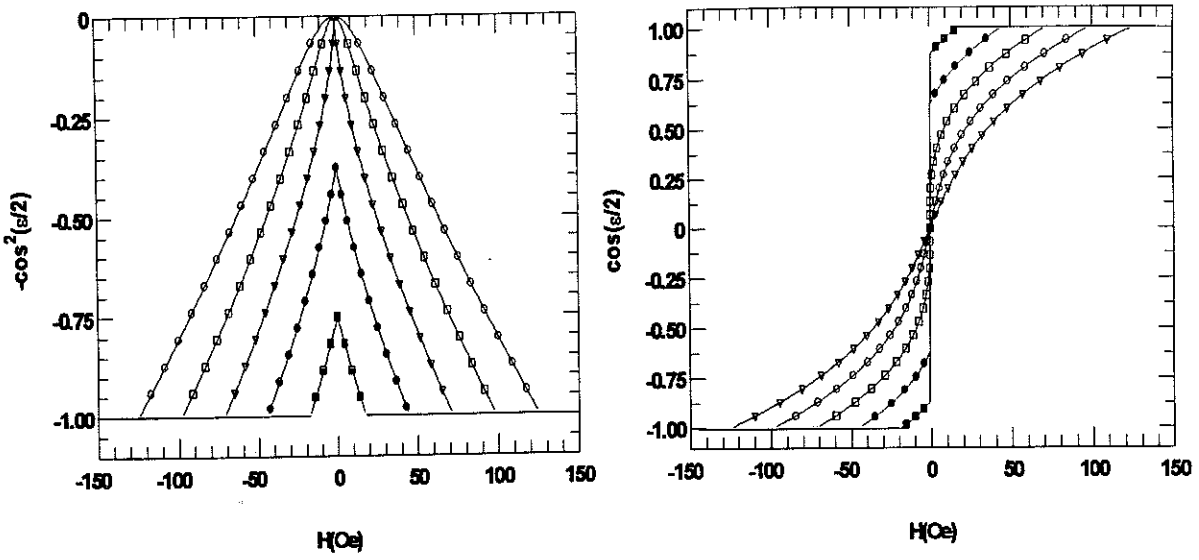


Figure IV.4: Simulation n°2 avec le terme bilinéaire qui croit du centre vers l'extérieur. Le terme BMs^2 reste constant à 0.002erg/cm^2.

2) L'introduction du couplage biquadratique, déforme les caractéristiques de transport au point d'inverser dans certains cas les courbures (cas où $2BMs^2 \geq JMs^2$). On peut grâce à lui observer une grande variété de forme allant de la parabole à « l'accent circonflexe » en passant par le triangle...Cette dernière forme est d'ailleurs très recherchée pour le développement de capteurs, car la caractéristique est linéaire. Au niveau des mesures d'aimantation on remarque aussi l'apparition de courbures plus ou moins prononcées selon le rapport des deux termes de couplage, ce qui confirme notre hypothèse du chapitre III.

3) Lorsque le couplage biquadratique domine le couplage bilinéaire, les aimantations deviennent non colinéaires ($\varepsilon \neq 180°$) et on note une forte réduction de la GMR accompagnée d'une rapide émergence d'une composante ferromagnétique (rémanent). Comme nous le faisions remarquer dans le chapitre précédent le rémanent observé expérimentalement n'est donc pas forcément relié à des couplages purement ferromagnétiques entre couches.
4)Même dans des zones de couplage F ($J<0$), le terme bilinéaire s'il est différent de zéro permet le maintien d'une faible GMR.

III. EVIDENCE D'UN TERME BIQUADRATIQUE DANS LES SYSTEMES Ag/FeNi ET Ag/FeCo.

De nombreuses présomptions de l'existence du couplage biquadratique ont été rapportées dans le chapitre III, notamment lors de la réduction de la GMR de part et d'autre du

plateau ou par la présence d'un fort rémanent dans les courbes d'aimantation pour des zones de faibles couplages A.F.
L'analyse des caractéristiques de transport et d'aimantation à 300K par le modèle de Fujiwara pour diverses épaisseurs d'Ag, va quantifier les intensités relatives de J et B et permettre une analyse rigoureuse de tous les différents comportements magnétiques observés.
La figure IV.5 rassemble l'ensemble des courbes de transport de la série Ag/FeNi; les lettres B à L correspondent à des épaisseurs décroissantes d'Ag, dont les valeurs sont données dans le tableau III.2 du Ch III.

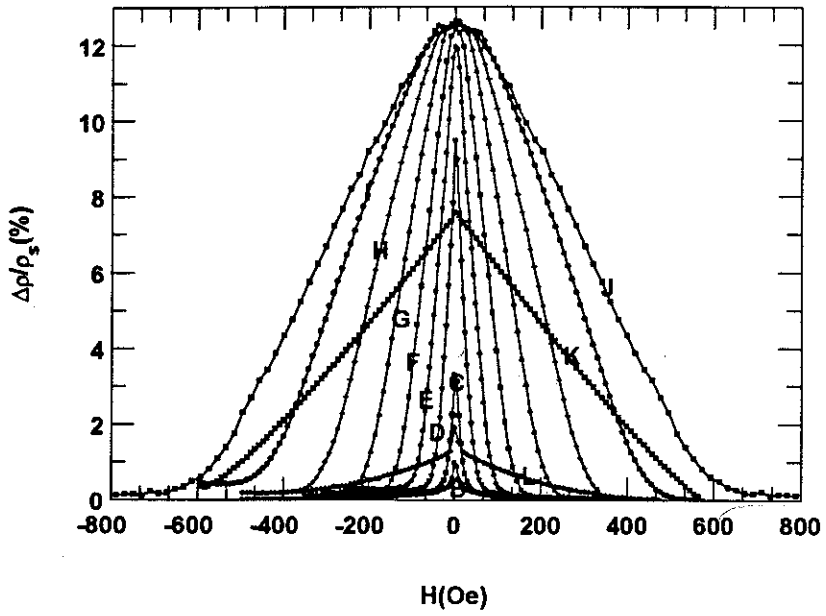


Figure IV.5: Magnéto-Résistance à 300K dans la série Ag/FeNi. Les lettres B à L font références aux épaisseurs d'Ag définies dans le tableau III.2 du Ch III. La large palette de formes est le signe de l'existence d'un terme biquadratique. Pour cette mesure le champ est longitudinal au courant.

La forte similitude entre ce faisceau de courbe et la simulation 2 indique clairement que le terme biquadratique a une grande influence.
La figure IV.6 est une renormalisation de ces courbes par l'éq (9) pour les rendre exploitables par le modèle. Les caractéristiques évoluent entre 0 et 1 pour des alignement antiparallèles en champ nul et entre x ($0<x\leq1$) et 1 pour les configurations non colinéaires. Les courbes continues sont le résultats des ajustements par l'éq (7) avec Ku=0. Seule la caractéristique de l'échantillon L, situé au bord du disque a nécéssité l'emploi d'une anisotropie planaire. L'utilité de ce terme d'anisotropie était évidente car contrairement aux autres caractéristiques il était impossible de superposer les mesures transverses et longitudinales. L'ajustement de ces deux configurations avec les éq (6) et (7) a permis d'estimer l'anisotropie de dépôt à 1.85 10^4 erg/cm^3.

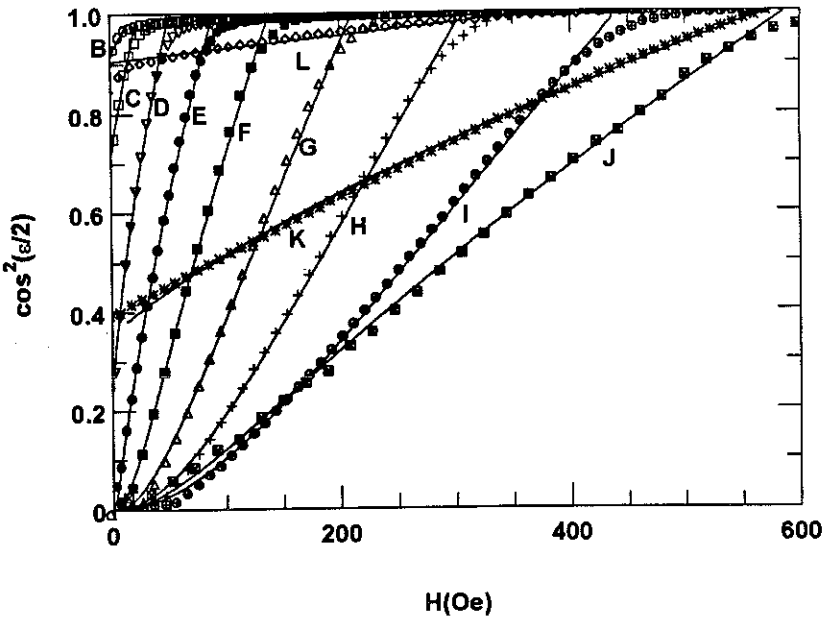


Figure IV.6: GMR renormalisée à 300K dans la série Ag/FeNi. Les points sont les valeurs expérimentales et les courbes continues ont été obtenues avec l'éq (7) et Ku=0.

Le modèle que nous utilisons ne prend en compte que les termes de couplage, il est donc incapable de représenter parfaitement les atteintes à la saturation, qui font entrer en jeu des mécanismes plus complexes d'anisotropie ou des fluctuations paramagnétiques aux interfaces. On observe donc des écarts entre les points expérimentaux et nos ajustements au dessus de 90% de l'amplitude. Néanmoins la validité du modèle est incontestable sur tous les autres points, à en juger par la qualité des ajustements des courbures et des variations d'amplitude de la GMR sur l'ensemble de la série. Le tableau IV.2 rassemble les valeurs des termes J et B, ainsi que les angles moyens ε entre aimantations en champ nul.

Commentaires:

- Les valeurs de J déduites du modèle sont cohérentes au niveau de leur amplitude avec celle du ch III, quoique légèrement supérieures pour compenser le signe négatif qui précéde le terme biquadratique dans le premier membre de l'éq (7).
- L'oscillation du couplage est par contre profondément altérée par la présence de B, avec un déphasage plus important que dans le Ch.III, qui se traduit par un décalage du front de l'oscillation vers les grandes épaisseurs. Nous reviendrons dans un prochain paragraphe sur les modifications de cette oscillation du couplage J.
- Les valeurs pour les épaisseurs extrèmes ont une erreur importante car l'ajustement n'est faisable que sur un nombre de points réduit; le signe négatif est réel mais les intensités sont assez aléatoires et peuvent varier d'un ajustement à l'autre. Ce signe négatif associé aux très faibles amplitudes de GMR (<3.5%) confirme que le terme biquadratique par sa seule présence peut maintenir une certaine GMR. Il démontre aussi l'inexactitude des valeurs de J du Ch.III, qui devaient toujours conserver des valeurs positives, pour rendre compte de la

GMR. Le couplage restait toujours purement A.F, et ne pouvait expliquer les réductions de GMR.

Epaisseur (Å)	Ref	$JMs^2*10^3(erg/cm^2)$	$BMs^2*10^3(erg/cm^2)$	$\Delta\rho/\rho s$ (%)	$\varepsilon(°)$
7.5	**L**	**-95**	**75**	**1.4**	**50**
8.3	**K**	**12.4**	**21**	**7.6**	**106**
9.1	**J**	**41**	**10.5**	**11.4**	**180**
9.8	**I**	**36**	**3.7**	**12.5**	**180**
10.5	**H**	**25**	**2.5**	**12.5**	**180**
11	**G**	**17**	**2**	**12.5**	**180**
11.72	**F**	**10**	**1.8**	**12.33**	**180**
12.2	**E**	**5.4**	**1.7**	**12**	**180**
12.4	**D**	**1.7**	**1.7**	**9.5**	**120**
12.6	**C**	**-2**	**2.3**	**3.27**	**64**
12.7	**B**	**-4**	**2.3**	**0.97**	**29.6**

Tableau IV.2: Valeurs des termes de couplages J et B d'après les ajustements de la figure IV.6.

- Les termes biquadratiques ne montrent pas pour leur part d'évidence d'une quelconque oscillation avec l'épaisseur d'Ag, quoique les valeurs augmentent légérement aux fortes épaisseurs. Mais comme pour les termes J, les erreurs des extrèmes peuvent être assez importantes, il ne faut donc pas y accorder un grand crédit. Par contre il est intéressant de noter que la décroissance des termes B n'est pas monotone, puisqu'on observe une rapide chute des valeurs jusqu'à 10Å suivi d'un plateau où les valeurs restent à peu près constantes autour de $2.10^{-3}erg/cm^2$. Les fortes valeurs de B aux faibles épaisseurs d'Ag parviennent à surpasser celles de J et sont responsables de l'ouverture des angles entre aimantations dans les échantillons K et L (ε=106 et 50°); de l'autre coté du plateau de GMR, c'est plutôt la disparition du couplage bilinéaire qui favorise la réapparition de moments non colinéaires (ε=120,64 et 29°).

La diminution de la GMR semble bien d'après cette analyse, être le reflet de la fermeture des aimantations, plutôt que de la perte progressive des couplages due à des variations d'épaisseur d'Ag au sein de la multicouche.

Notre analyse des courbes d'aimantation dans le chapitre III faisait intervenir des termes biquadratiques pour expliquer la présence des aimantations rémanentes et des courbures. Nous avons vu avec les simulations que ces hypothèses étaient justifiées, mais nous pouvons à présent superposer les points expérimentaux et des simulations du $\cos(\varepsilon/2)$ en utilisant les paramètres déterminés précédemment avec les courbes de transport (fig IV.7).

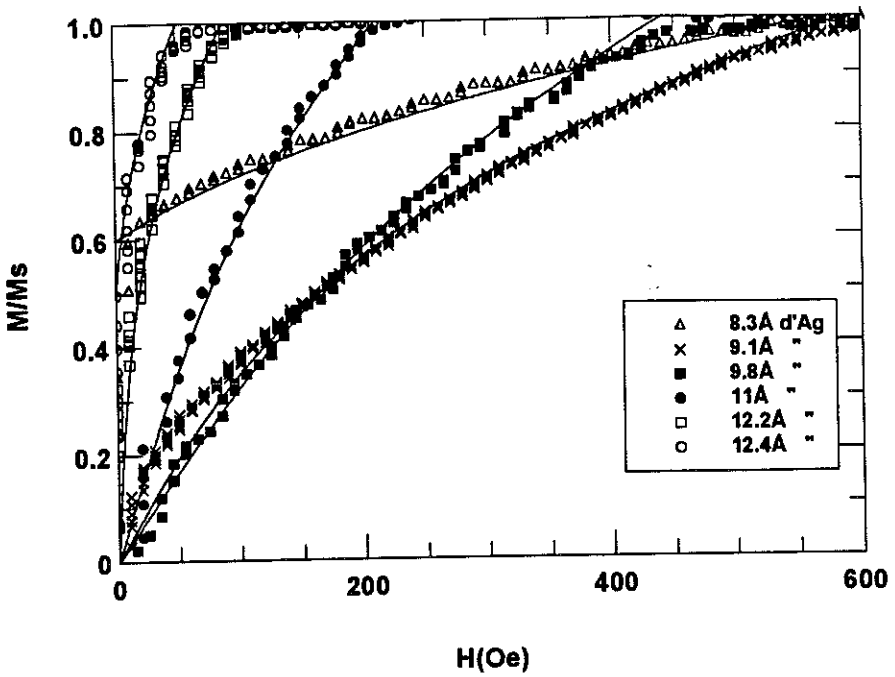


Figure IV.7: comparaison des courbes d'aimantation expérimentales (points) et calculées (continues) à 300K à partir des paramètres du tableau IV.2.

La très bonne corrélation entre les courbes calculées et les points expérimentaux tant au niveau des courbures que des aimantations rémanentes confirme qu'un unique jeu de paramètre permet de décrire tous les comportements magnétiques; elle est aussi révélatrice de la validité de l'éq (9) qui détermine une relation directe entre l'amplitude de GMR et l'aimantation:

$$\left(\frac{M}{Ms}\right)^2 = \frac{-\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{mes}}{\left(\frac{\Delta R}{Rs}\right)_{max}} + 1 \qquad (10)$$

Cette première analyse pour le système Ag/FeNi prouve sans conteste l'existence d'un terme biquadratique dont l'amplitude n'est pas du tout négligeable. L'explication physique de ce terme reste encore à déterminer, mais nous avons déjà plusieurs indices sur son comportement...

Dans la série Ag/FeCo on n'observe pas de réduction de la GMR, il ne faut donc pas s'attendre à des moments non colinéaires; par contre les formes sont variées comme dans le système Ag/FeNi en fonction de l'épaisseur d'Ag, et le terme biquadratique ne doit pas y être étranger. La figure suivante présente les 7 échantillons (B→H) de la série dont l'amplitude de GMR a été renormalisée avec l'éq (9). Une nouvelle fois la description des courbures par le modèle de Fujiwara est tout à fait satisfaisante.

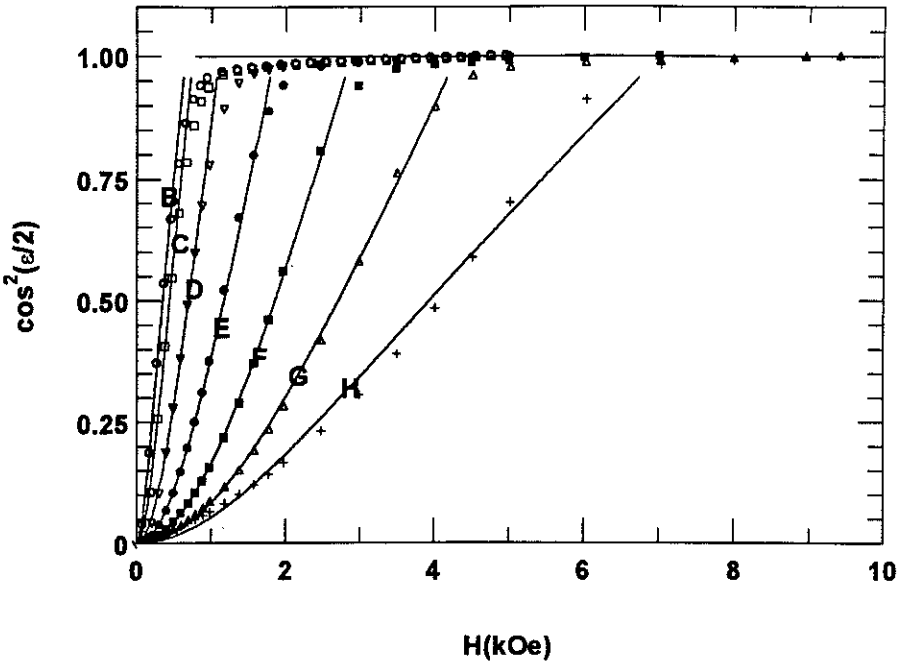


Figure IV.8: GMR renormalisée à 300K dans le système Ag/CoFe. Les courbes continues sont les ajustements par l'éq(7) et Ku=0 et les points sont les valeurs expérimentales.

La présence du terme B dans ce second système tend à prouver qu'il doit exister d'une manière générale dans tous les systèmes en multicouche, mais qu'il n'a pas été souvent détecté à cause du manque d'analyse systèmatique des caractéristiques de transport.

Le tableau suivant donne les valeurs de J et B dans ce second système.

Epaisseur d'Ag (Å)	Ref	$JMs^2*10^3(erg/cm^2)$	$BMs^2*10^3(erg/cm^2)$	$\Delta\rho/\rho_s(\%)$
10.25	**H**	**270**	**34**	**47.05**
10.8	**G**	**193**	**12.5**	**47.05**
11.35	**F**	**136**	**7.7**	**47.05**
11.7	**E**	**87**	**6.5**	**47.05**
12	**D**	**53**	**6.1**	**47.05**
12.25	**C**	**34**	**5.6**	**44.9**
12.4	**B**	**27**	**5.4**	**42.85**

Tableau IV.3: Valeurs de J et B d'après ajustement figure IV.8

Compte tenu de la faible variation des épaisseurs d'Ag, nous n'observons pas d'oscillation du couplage J mais seulement une décroissance. Par comparaison avec le système Ag/FeNi le maximum devrait se situer aussi autour de 9Å d'Ag. Malgré tout nous devrions pouvoir ajuster

cette décroissance comme la branche descendante de l'oscillation dans le modèle de Bruno avec les mêmes paramètres que Ag/FeNi, puisque le matériau non magnétique est identique.

Le terme biquadratique après une rapide décroissance semble se stabiliser autour d'une valeur de 6.10^{-3}erg/cm^2 , qui est 3 fois plus importante que dans Ag/FeNi. Son comportement est cependant très similaire à celui observé dans la série précédente.

A l'issue de cette première analyse des propriétés magnétiques à 300K, on tire trois enseignements sur le terme biquadratique:
1) Il est présent dans nos deux systèmes, et donc probablement dans tous les systèmes en multicouches et ce quelque soit la valeur du couplage J.
2) Il ne semble pas présenter de caractère oscillant avec l'épaisseur de la couche non magnétique, conformément aux observations de Rührig.
3) Les variations de B avec l'épaisseur d'Ag font apparaître deux régimes: une rapide décroissance aux faibles épaisseurs et une valeur pratiquement constante aux plus fortes.

Cette dernière constatation nous fait prendre conscience qu'il existe peut être plusieurs mécanismes indépendants responsables de l'apparition du terme B. Aux faibles épaisseurs d'Ag par exemple les couches peuvent présenter des discontinuités (« pin-holes ») favorisant la création de ponts magnétiques. Un tel modèle a été envisagé par Bobo et al[11] dans le système Co/Cu et s'est révélé très convaincant. Nous allons tenter de l'utiliser pour nos systèmes dans le cas des faibles épaisseurs d'Ag. Pour justifier l'utilisation de ce modèle, il faut considérer la croissance de la couche d'Ag. Pour un dépôt à 300K, la croissance se fait sous forme d'îlots 3D qui coalescent à partir d'une épaisseur de couche de 100Å. A basses températures, la coalescence apparait plus rapidement mais pour les très faibles épaisseurs il est possible que cette croissance 3D persiste, provoquant l'apparition d'impuretés de type « pin-holes ».

IV. MODELE DES « PIN-HOLES » POUR LE SYSTEME NIFE/AG .

IV.A. Modèle et analyse des courbes d'aimantation.

Pour cette analyse nous avons collaboré avec **J.F.Bobo du C.N.R.S de Vandoeuvre**, qui a développé un programme de simulation de courbes d'aimantation dans des multicouches présentant des discontinuités de la couche non magnétique.

Pour résumé son modèle on peut le décrire comme suit. Considérons deux couches ferromagnétiques douces (épaisseur t_m, aimantation M_s, constante de rigidité A) couplées antiparallèlement à travers une couche non magnétique d'épaisseur t_{nm}. On introduit ensuite une distribution aléatoire de ponts magnétiques de diamètre d qui assurent un couplage ferro local entre couches. Les aimantations vont donc s'aligner respectivement suivant des angles

$\theta_1(r)=\theta$ et $\theta_2(r)=-\theta$ par rapport à la direction du champ appliqué. En négligeant les champs démagnétisants dans les ponts ferro (qui tendent à aligner les aimantations perpendiculairement aux couches) on peut écrire l'énergie totale du système comme:

$$E_{tot} = \int_{r=0}^{\infty} \left\{ 2t_m A \left(\frac{d\theta}{dr} \right)^2 - 2t_m M_s H \cos\theta - J(r) \cos 2\theta \right\} 2\pi r dr \qquad (11)$$

avec $J(r)=J_{RKKY}<0$ en dehors des ponts (pour $r>d/2$) et $J(r)=J_{pont}=2A/t_{nm}>0$ dans les ponts.

La détermination des $\theta(r)$ ne pouvant s'obtenir par une expression analytique en 2 dimensions, on doit donc avoir recours à une modélisation numérique micromagnétique. Le système est alors représenté par une distribution aléatoire de ponts ferro dont la taille a est identique au pas du réseau carré de cellules (indicées i et j). Dans toutes les simulations le diamètre des ponts reste identique à la maille, seul le nombre de ponts détermine donc la concentration surfacique, indépendamment de leur taille. L'énergie totale d'une configuration de spins θ_{ij} est la somme sur toutes les cellules de l'énergie locale:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{E_{ij}}{a^2} = -2M_s t_m H \cos\theta_{ij} - J_{ij} \cos 2\theta_{ij} - \frac{2At_m}{a^2} \sum_{i'j'}^{voi\,sin\,s} \cos\left(\theta_{ij} - \theta_{i'j'}\right) \qquad (12)$$

Pour le calcul on entre les paramètres sans dimensions:

$\lambda_{ij} = \dfrac{At_m}{J_{RKKY} a^2} < 0$ hors des ponts.

$\lambda_{ij} = \dfrac{t_m t_{nm}}{2a^2} > 0$ dans les ponts

et $h = \dfrac{H_{appl} M_s t_m}{2J_{RKKY}}$.

On entre aussi le nombre de ponts ferromagnétiques n, ce qui permet de remonter à leur concentration par unité de surface $x=na^2/D^2$; où D=a×nombre de cellule (10, 20 ou 40).

Nous avons utilisé ce modèle pour simuler les courbes d'aimantation des trois échantillons possédant les plus faibles épaisseurs d'Ag (7.5, 8.3 et 9.1Å), qui sont susceptibles de développer de telles discontinuités. Au dessus de 9.1Å la disparition de l'aimantation spontannée s'interprétant par une configuration purement antiparallèle des aimantations; le modèle n'est donc plus justifiable et ne donne pas d'ailleurs des paramètres physiques expliquables. L'étude des résultats obtenus par Bobo sur des multicouches de Co/Cu met en

relief le rôle primordial du choix des diamètres de « pin-holes ». Pour des valeurs trop importantes les caractéristiques d'aimantation sont linéaires alors que dans le cas inverse les courbures sont trop accentuées et les champs de saturation sont bien trop faibles. Le meilleur compromis consiste à choisir des diamètres de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche non magnétique[11]. En effet c'est à partir de cette valeur que les caractéristiques font apparaître une amorce de courbure. Nos échantillons présentant tous trois une courbure plus ou moins accentuée, nous ajusterons la valeur du paramètre a autour des valeurs des épaisseurs d'Ag de chaque couche.
Le second paramètre important est l'amplitude effective du terme d'interaction RKKY J_{eff}. Bobo a montré que les valeurs à introduire dans son modèle devaient être nettement supérieures à celles déduites du modèle analytique.
Enfin la concentration en « pin-holes » devra être ajustée pour optimiser la valeur de l'aimantation rémanente en gardant à l'esprit qu'elle devra diminuer avec l'épaisseur d'Ag pour ne plus avoir besoin de ce modèle au dessus de 10Å d'Ag.

La figure IV.9 montre la comparaison des résultats de simulation (courbes pointillées) et des points expérimentaux. Le bon accord observé donne une forte crédibilité à ce type d'explication du terme biquadratique aux faibles épaisseurs d'Ag. Les écarts par rapport aux points expérimentaux peuvent tout à fait s'expliquer par la limitation du modèle à une taille unique de « pin-holes » au lieu d'une distribution de taille que l'on peut attendre dans un système réel. Toutefois ce simple modèle d'une distribution aléatoire de « pin-holes » de taille unique suffit largement à représenter correctement les variations des rémanents et des courbures.

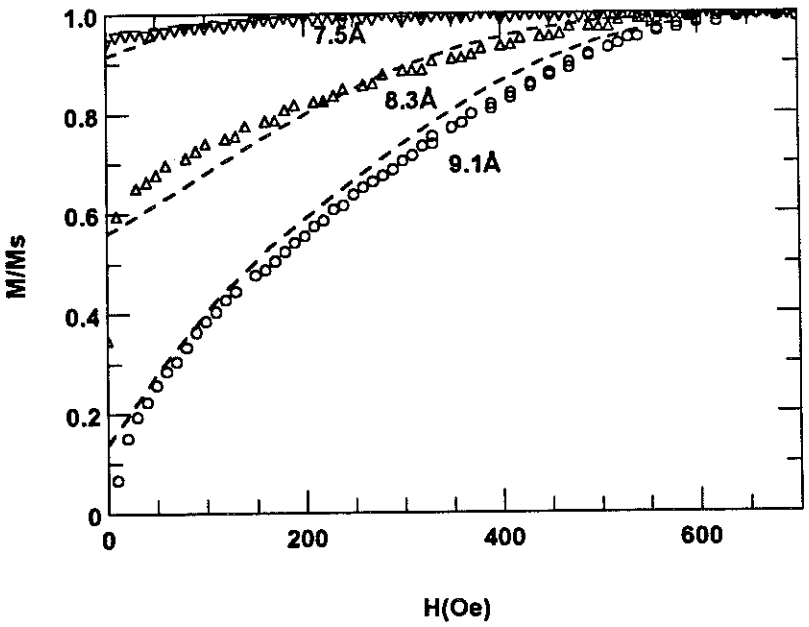


Figure IV.9: Comparaison des courbes d'aimantation expérimentales (points) et des courbes simulées par le modèle de « pin-holes » (pointillés). Les valeurs des paramètres de simulation sont données dans le texte.

La lecture du tableau des paramètres de simulation (tableau IV.4) montre des évolution très cohérentes de chacun des trois termes:
-Le couplage RKKY effectif décroit continuement lorsque l'épaisseur d'Ag augmente. Ce résultat est contraire au modèle de Fujiwara qui montrait plutôt un maximum de couplage pour la plus grande des 3 épaisseurs, mais il n'est pas dit que ces corrections n'aillent pas dans le sens d'une augmentation de la période d'oscillation de J, qui jusqu'à présent était un peu faible par rapport à la période théorique pour l'Ag <111>.
-Les diamètres de « pin-holes » que nous déterminons vont dans le sens de la remarque de Bobo, puisque l'on observe le meilleur accord pour des valeurs très proches des épaisseurs des couches d'Ag correspondantes.
-Enfin on note une rapide décroissance de la concentration de « pin-holes » qui semble bien indiquer une disparition de ce phénomène autour de 10Å d'Ag.

Epaisseur d'Ag (Å)	J_{eff}(erg/cm^2)	Diamètre pin-hole (Å)	Conc. (% surf.totale)
7.5	**0.082**	**7.5**	**1.25**
8.3	**0.072**	**8.5**	**0.5**
9.1	**0.055**	**8.5**	**0.25**

Tableau IV.4: Paramètres de simulation de la figure précédente.

Récemment des multicouches de FeNi/Ag à faibles épaisseurs d'Ag élaborées au Laboratoire de Métallurgie Physique (DRF) en pulvérisation RF ont présenté des champs de saturation allant jusqu'à 800Oe, soit bien plus haut que nos observations. Cependant cette valeur est tout à fait en accord avec le champ de saturation que l'on observerait dans notre échantillon à 7.5Å d'Ag s'il était exempt de « pin-holes ». Il semble donc que ces nouveaux échantillons aient une qualité structurale meilleure qui les dispense de discontinuités dans la couche d'Ag. Le bon accord entre ce fort champ de saturation mesuré et le champ de saturation que l'on déduirait du terme J du modèle de Bobo, renforce encore la vraisemblance du modèle.

IV.B. Modification de l'oscillation du terme bilinéaire.

L'ajustement des caractéristiques magnétiques par le modèle à deux termes de couplage a profondément modifié les valeurs de J par rapport au Ch.III, surtout aux faibles épaisseurs d'Ag. Cependant la modélisation réaliste de la contribution biquadratique aux faibles épaisseurs d'Ag a corrigé ces valeurs de J trop fortement atténuées par le modèle phénomènologique. Nous pouvons donc désormais ajuster les valeurs effectives de J avec le modèle de Bruno, et voir si elles se rapprochent plus des valeurs théoriques.

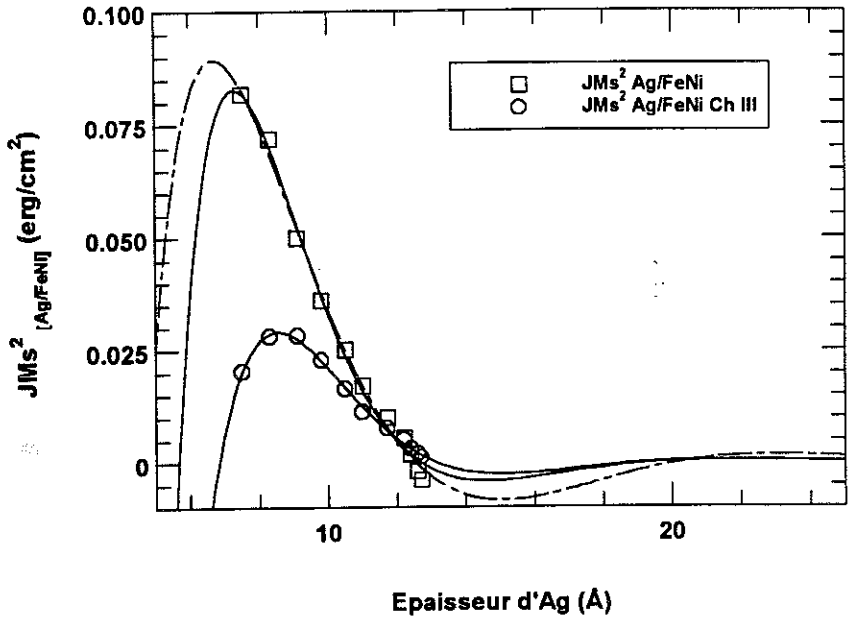


Figure IV.10: Oscillations des termes de couplage J à 300K dans le système Ag/FeNi d'après les ajustements de la GMR et les corrections par le modèle de « pin-holes » (carrés) et d'après les champs de saturation (cercles). Les courbes continues ou pointillées sont le résultat d'ajustements par le modèle de Bruno, dont les paramètres sont donnés dans le texte. Pour les carrés la courbe continue correspond à I_0 bloqué et la courbe pointillée à I_0 libre.

La figure IV.10 compare les valeurs de J déterminées dans ce chapitre à celle du chapitre précédent. On remarque, outre la différence d'amplitude, une modification de la phase et de la période d'oscillation. Désormais le maximum de couplage intervient pour des épaisseurs bien plus faibles, ce qui montre que sans la présence des discontinuités on aurait eu un plateau de GMR bien plus étendu. La nouvelle oscillation de J peut comme dans le ChIII, être parfaitement représentée par le modèle de Bruno. Les paramètres sont donnés dans le tableau suivant.

	I_0(erg/cm^2)	Λ(Å)	φ(°)	t_c(Å)
Théorie	**13**	**13.96**	**-90**	**13.02**
J(I_0 Bloqué)ChIII	**13**	**13.1**	**-10.9**	**3.48**
J(I_0 libre)ChIII	**5.65**	**12.62**	**-14.88**	**4.94**
J(I_0 Bloqué)ChIV	**13**	**14.05**	**+34.63**	**4.26**
J(I_0 libre)ChIV	**4.24**	**15.51**	**+69.2**	**8.98**

Tableau IV.5:Paramètres de l'eq de Bruno décrivant les oscillations des termes de couplage J.

Commentaires:
Les modifications des valeurs de J semblent avoir été bénéfiques, puisque dans tous les cas de figure les paramètres se rapprochent des valeurs théoriques. En effet si on compare les résultats pour I_0 bloqué, on constate désormais un très bon ajustement de la période d'oscillation qui descend à moins de 1% de la valeur théorique. La valeur du terme d'amortissement a elle aussi légérement évolué, mais reste très éloignée des 13.02Å attendus. La phase a un signe complétement opposé à celle du chapitre III et à la phase théorique, mais comme prévient Bruno, il ne faut pas y porter une grande attention.

Lorsque I_0 est libre, la période devient supérieure à la valeur théorique, mais garde le même écart que celle du ChIII. Par contre l'épaisseur critique d'amortissement a fortement augmenté et atteint 70% de la valeur théorique.

Il est difficile de dire s'il faut plutôt privilégier l'ajustement où I_0 est bloqué ou l'autre, puisque dans chaque cas certains paramètres s'améliorent nettement. La valeur de tc, on le sait, doit être assez faible du fait de la mauvaise qualité cristallographique des matériaux déposés par pulvérisation; il ne faut donc pas se polariser sur ce terme. L'ajustement où l'on bloque I_0 rend tout aussi bien compte de la variation des valeurs expérimentales avec pourtant un paramètre de moins, on peut donc lui accorder un peu plus de crédit.

En conclusion, les multiples corrections de J par l'introduction d'un terme biquadratique et du modèle de pin-holes ne furent pas vaines et montrent bien qu'une analyse trop rapide entraîne des erreurs importantes qui peuvent fausser les interprétations.

V. MODELE DE SPINS INDEPENDANTS OU STRUCTURE EN DOMAINES AUX FORTES EPAISSEURS D'Ag.

V.A. Apparition d'états non colinéaires aux basses températures.

Dans le paragraphe III nous avons vu que le terme biquadratique s'atténuait considérablement aux fortes épaisseurs d'Ag avec la disparition des « pin-holes »; cependant sa valeur bien que faible n'est pas nulle. Nous allons à présent chercher l'origine de ce second terme en définisssant un certain nombre de critères susceptibles de mieux le caractériser.

Dans le chapitre précédent nous avons remarqué une réduction de la largeur du plateau de GMR à 4.2K (fig III.7 Ch.III). L'amplitude maximale de 28.4% pour les échantillons I,H,G se réduisait à 25.2% pour F et tombait à 22.5% pour E. Nous allons analyser cette réduction en ajustant les caractéristiques magnétiques (transport et aimantation) par le modèle de Fujiwara en tenant compte de l'effet de la température sur la GMR. L'allongement du lpm et la réduction de la diffusion avec retournement du spin entrainent une augmentation de

l'amplitude de GMR lorsqu'on baisse la température, il convient donc de définir pour chaque température un $\left(\frac{\Delta R}{R_s}\right)_{max}$ pour la normalisation (cf éq. IV.9). Les échantillons qui demeurent toujours couplés AF auront une GMR normalisée $\cos^2(\varepsilon/2)$ évoluant entre 0 et 1 à toutes températures, tandis que les échantillons dont la GMR sera inférieure au maximum attendu évolueront entre x et 1.

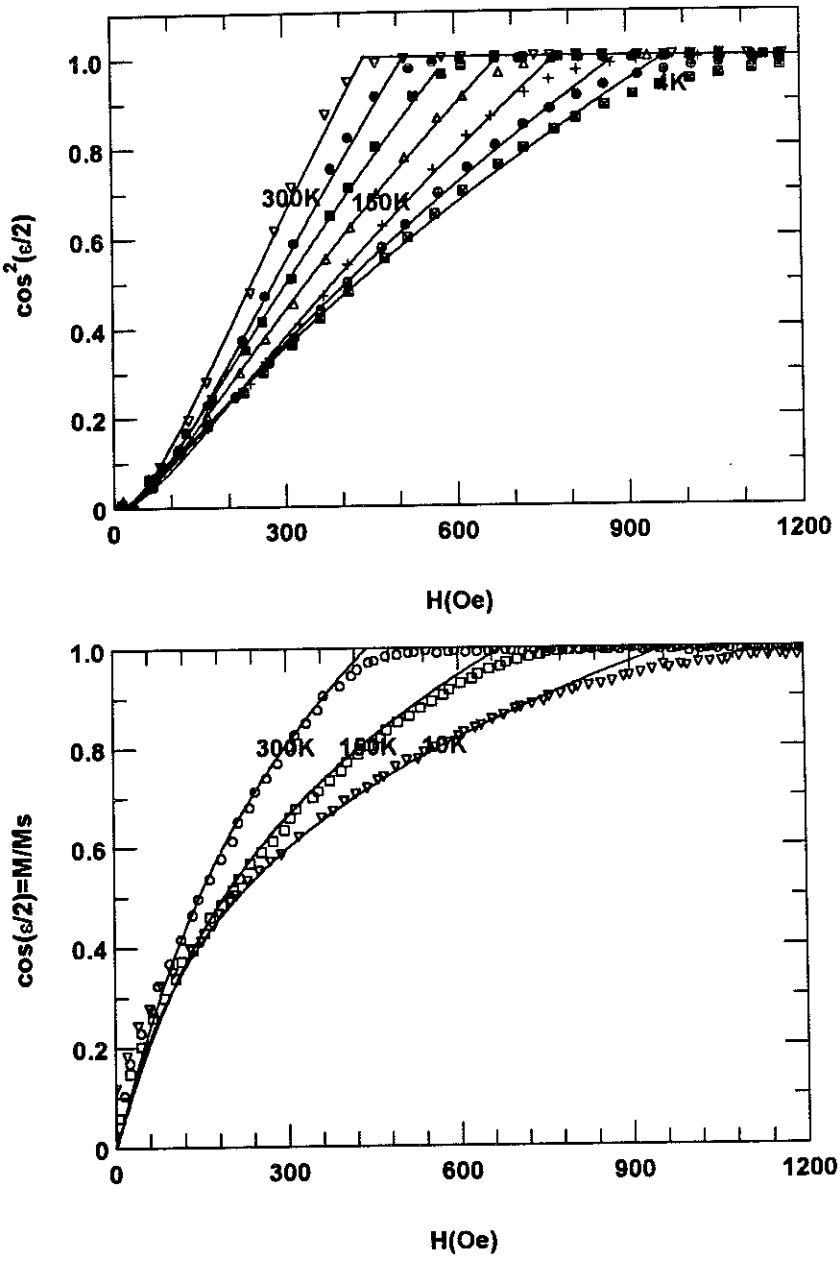
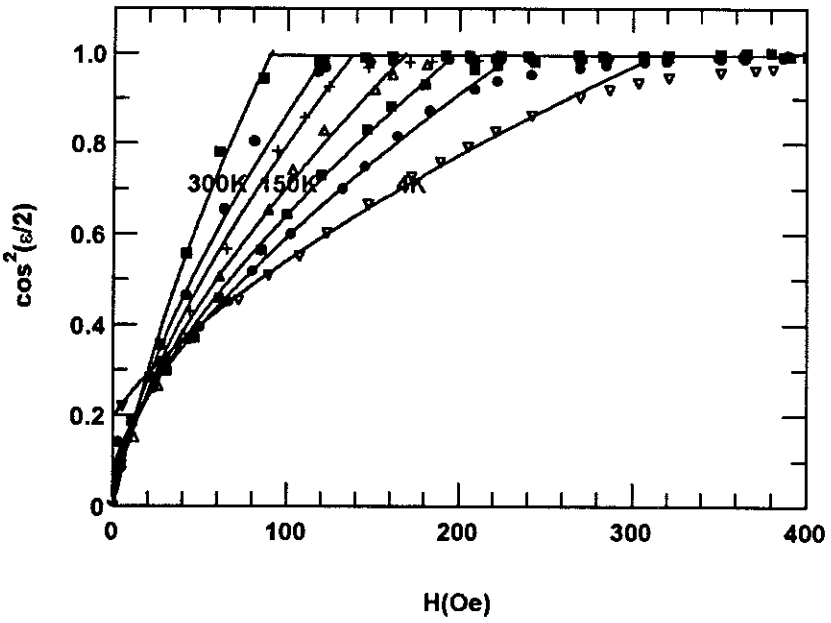


Figure IV.11: GMR et aimantation réduites à différentes températures pour l'échantillon de 9.8Å d'Ag. Les températures varient par pas de 50K pour le transport. Les courbes continues sont le résultat des ajustements par le modèle de Fujiwara pour la GMR et du calcul pour l'aimantation avec le même jeu de paramètres.

La figure IV.11 présente les caractéristiques magnétiques ainsi que les ajustements de l'échantillon I (9.8Å d'Ag) qui garde toujours une amplitude de GMR maximale.
La GMR réduite varie à toutes températures entre 0 et 1 et les valeurs de J du modèle dominent toujours largement celles de B. Les courbes d'aimantation confirment le couplage purement AF puisque l'on n'observe jamais d'aimantation rémanente.
La principale évolution est l'augmentation des champs de saturation, signe d'un renforcement des couplages à basse température. La polarisation des électrons de conduction est à plus longue portée car les phonons et les fluctuations thermiques sont réduits.
Même si les couplages demeurent AF il est important de noter les variations de courbures qui s'accentuent nettement aux basses températures. Le terme biquadratique semble donc avoir une influence plus importante, ce qui est confirmé par un rapport J/2B en constante diminution.

L'étude des mêmes caractéristiques pour l'échantillon E (12.2Å) donne des résultats différents (fig IV.12). Les courbes de transport ne montrent un comportement purement AF qu'au dessus de 150K. Pour des températures plus faibles la valeur du $\cos^2(\varepsilon/2)$ en champ nul augmente pour atteindre 0.22 à 4K. Cette réduction de la GMR est confirmée par l'apparition plus visible d'une aimantation rémanente au dessous de 150K. Ce rémanent ne pouvant être le fait de fluctuations d'épaisseurs, il est donc le signe évident que B surpasse J du fait de variations thermiques différentes.
A 4K, l'ouverture ε entre aimantations descend à 127° (d'après l'ajustement de la courbe de transport), on vérifie bien au niveau de l'aimantation que $\cos(\varepsilon/2)=0.44$ en champ nul, donc qu'il correspond bien à la projection des aimantations selon l'axe du champ magnétique.



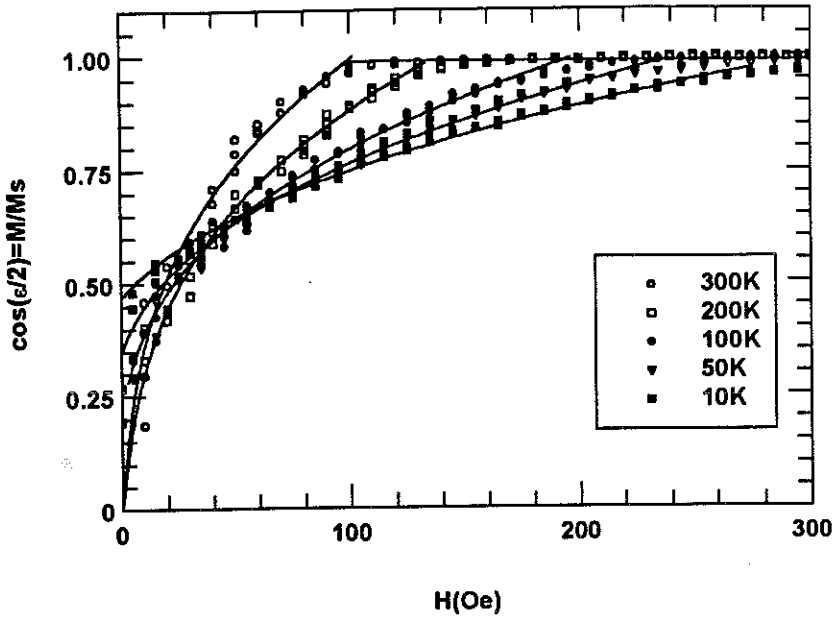


Figure IV.12: GMR (page précédente) et aimantation (ci dessus) réduites à différentes températures dans l'échantillon avec 12.2Å d'Ag. Pour l'explication des courbes continues voir légende précédente.

L'apparition de moments non colinéaires à basse température a déjà été observé par Rodmacq et al.[12] dans le système Ag(10.8Å)/FeNi(12.2Å). Les mesures d'aimantation et de diffraction neutronique ont permis d'estimer l'angle entre aimantations à 135° à 10K. Il peut paraître étonnant qu'un tel phénomène ait été observé pour une épaisseur d'Ag aussi faible, alors que dans notre cas le premier signe apparait autour de 12Å, mais l'intensité du terme de couplage RKKY était en fait plus faible que dans notre série d'échantillons. La possibilité de moments non colinéaires dans les régions à forts couplages (plateau de GMR à 300K) est clairement démontrée par les mesures précédentes. Il suffit de baisser suffisamment la température pour que le terme B surpasse J grâce à une plus forte dépendance thermique.

On peut aussi envisager un comportement opposé dans les zones où ε est très faible à cause de la compétition entre B et un couplage J ferromagnétique. Le terme biquadratique s'il se renforce plus vite que J pourrait alors réouvrir les moments! L'analyse des caractéristiques de transport de l'échantillon avec 12.6Å d'Ag qui ne posséde que 3.3% de GMR à 300K, montre qu'un tel comportement est tout à fait envisageable (fig IV.13). En effet on voit nettement qu'au fur et à mesure que la température décroit l'angle d'ouverture augmente (de 55° à 86.1°). Parallèlement la GMR passe de 3.3% à 13.42%.

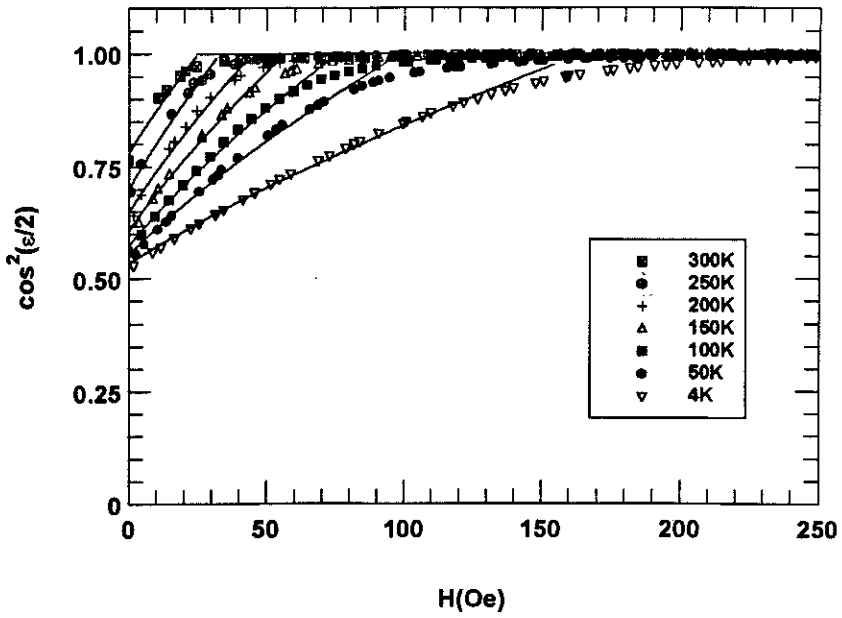


Figure IV.13: GMR normalisée à différentes températures pour l'échantillon avec 12.6Å d'Ag. Voir légendes précédentes pour les courbes continues.

En résumé, l'étude de ces trois cas a clairement montré la forte influence de B à basse température. Selon l'intensité et le signe de J, l'augmentation de l'intensité de B peut avoir plusieurs effets: fermer les moments et réduire la GMR (couplage AF) ou réouvrir les moments et augmenter la GMR (couplage ferro). La figure IV.14 rassemble les valeurs de ε en fonction de la température pour différentes épaisseurs d'Ag.

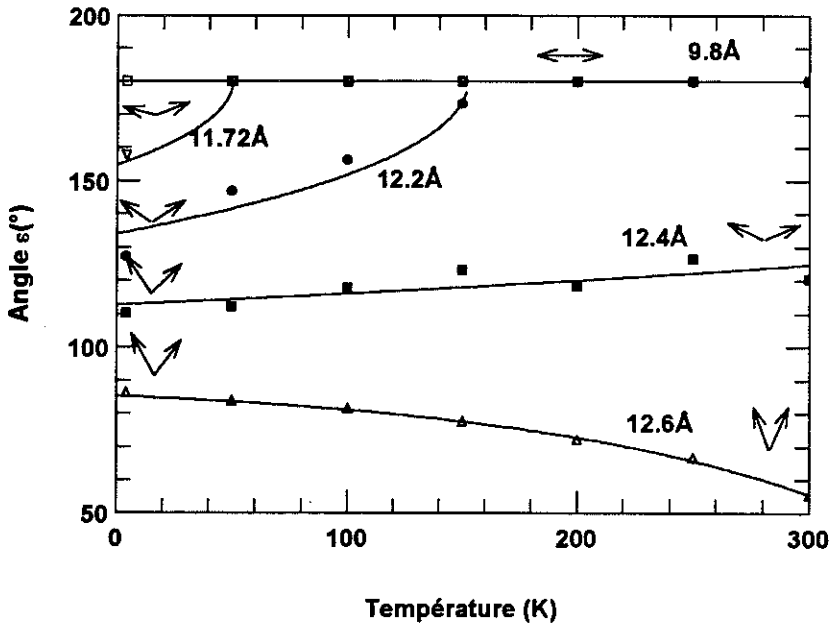


Figure IV.14: Variation de l'angle entre aimantations avec la température d'après les ajustements des caractéristiques de transport. Les lignes continues sont le résultat d'un ajustement par la loi $\varepsilon=acos(-J/2B\ exp(T/T_0))$.

Ce graphe permet plusieurs constatations:
1) On remarque que l'échantillon avec 9.8Å reste couplé AF à toutes températures, on peut donc définir un rapport limite **J/2B=3.5** (à 300K) pour lequel la variation thermique de B ne pourra jamais contrecarrer l'alignement antiparallèle.
2) La dépendance thermique de ε se décrit très bien par la loi $\varepsilon=\text{acos}(-J/2B\ \exp(T/T_0))$ que nous justifierons par la suite lorsque nous aurons déterminé les dépendances thermiques de J et B.
3) En extrapolant tous les ajustements à J/2B=0, on vérifie qu'ils convergent tous vers un angle limite de 90°.
En conclusion, cette étude des variations thermiques de la GMR nous a permis de dégager un critère très important de ce second terme biquadratique: il présente une **très forte dépendance thermique**, bien supérieure à celle de J qui lui permet de refermer les aimantations à basse température, même pour des échantillons à priori fortement couplés. De plus nous avons maintenant l'explication de la réduction de la largeur du plateau de GMR aux basses températures.

V.B. Loi de dépendance thermique des termes de couplage.

Les ajustements des caractéristiques de la GMR nous donnent des séries de couples (J,B) à chaque température pour un même échantillon. Nous pouvons ainsi nous faire une idée de la corrélation entre J et B. La figure suivante trace les variations de B en fonction de J pour quelques échantillons de la série.

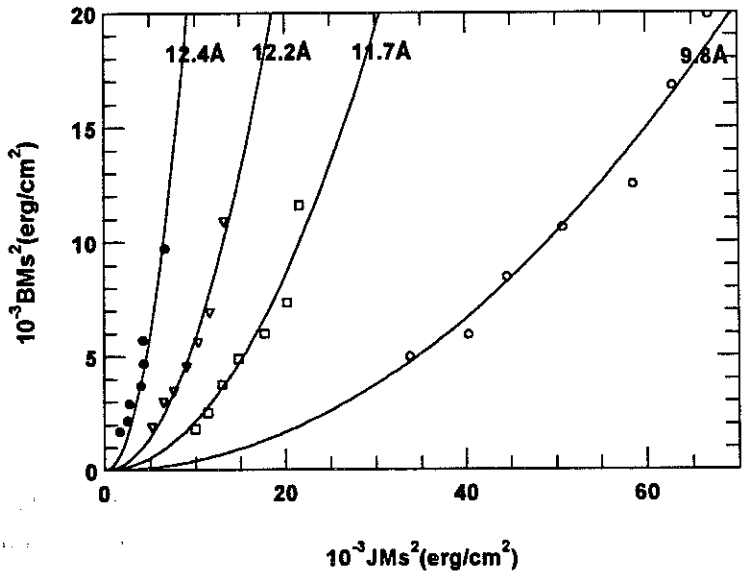


Figure IV.15: Corrélation entre B et J d'après les dépendances thermiques de la Magnéto-résistance. Les courbes continues sont des ajustements par une simple loi carrée.

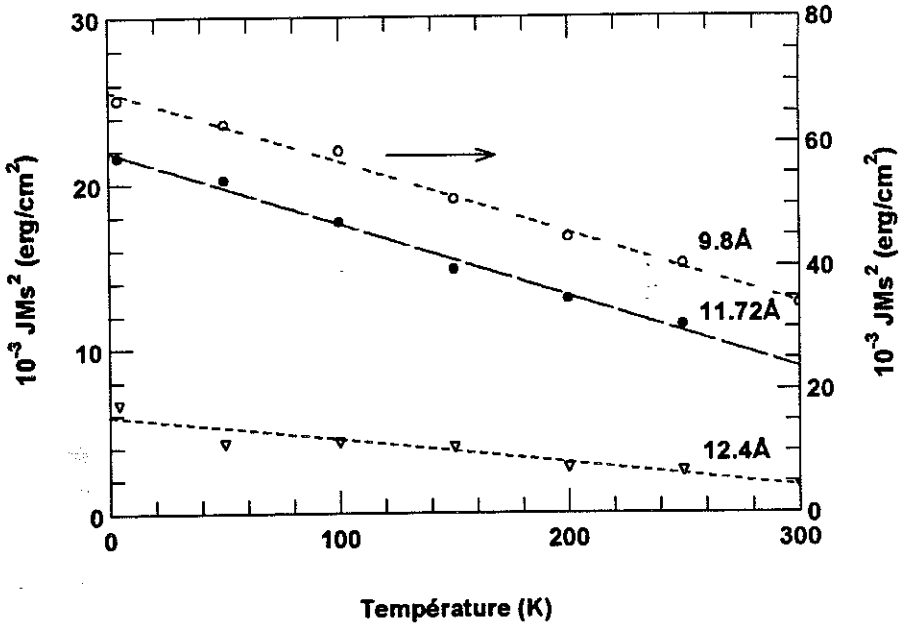
Pour chaque échantillon les variations de B peuvent être représentées par une simple loi en carré du terme J ($B=aJ^2$) où a est un paramètre ajustable. Ce type de variation s'accorde bien avec le modèle de Slonczewski qui prévoit une contribution biquadratique variant comme le carré de ΔJ, mais nous avons déjà montré l'inadéquation de ce modèle avec nos systèmes. Cette **dépendance quadratique définit tout de même un second critère important**.
Une deuxième remarque concernant cette figure: On note aux basses températures (points les plus hauts) que le terme B ne sera pas nul au niveau du zéro de J. Si on considère un caractère oscillant de ce second terme B (modèles théoriques), il doit exister alors un **déphasage important entre les oscillations de J et B en fonction de l'épaisseur d'Ag.**

Etudions maintenant de plus près les lois de variations thermiques des termes J et B. Première constatation, les deux termes de couplage varient fortement avec la température. J est multiplié par 2 voire 4 entre l'ambiante et 4K; et B est multiplié par 5 ou 6. Deuxièmement, les corrections des variations thermiques de l'aimantation sont nettement insuffisantes pour rendre compte de ces variations. Il faut donc en conclure que les termes de couplages eux mêmes sont fortement dépendants de la température.

Les variations thermiques des termes de couplage ont été ajustées dans le système Fe/Al/Fe[13] en utilisant des relations du type:

$$J(T)=J(0)(1-T/T_0) \text{ et } B(T)=B(0)(1-T/T_0)^2 \qquad (13)$$

La description des valeurs de B(T) est satisfaisante avec ce modèle, mais les auteurs trouvent qu'elle est meilleure avec une exponentielle. Cependant aucune théorie ne prédit un tel comportement. Récemment dans son modèle d'interférences multiples[4], Bruno a établi la dépendance thermique des termes de couplages. Selon lui elle est principalement liée à l'élargissement thermique du vecteur k_F d'une largeur $\Delta k_F \approx k_B Tm/\hbar^2 k_F$, ce qui produit une atténuation du couplage de la forme $J(T)=J(0).\ T/T_0\ /\ \sinh(T/T_0)$. Cette forme montre un effet de saturation aux basses températures non observé, qui ne permet pas un ajustement correct. Nous resterons donc sur les deux lois phénoménologiques décrites précédemment.
Pour faire la part entre les différents modèles de dépendance thermique, nous allons les tester par la description de nos résultats. La figure IV.16 présente les variations thermiques du terme bilinéaire pour 3 échantillons d'épaisseur 9.8, 11.72, et 12.4Å qui correspondent respectivement aux 3 états rencontrés: toujours A.F, canté à basses températures et toujours canté. La comparaison des deux ajustements, linéaire en T ou en exponentielle de T, ne permet pas de trancher sur la validité de l'un ou l'autre. Les variations thermiques de B plus sensibles au choix de la forme de l'ajustement lèvent l'ambiguité et montrent que le carré de l'exponentielle est plus proche des points expérimentaux (figure IV.17).



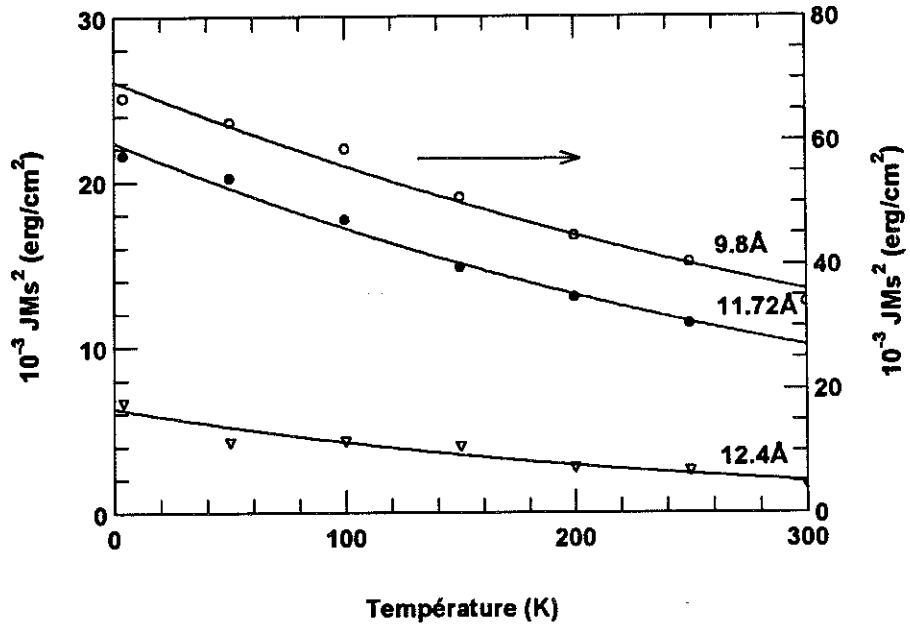


Figure IV.16: Dépendance thermique du terme bilinéaire pour 3 épaisseurs d'Ag. Les courbes en pointillés correspondent à un ajustement de la forme $J=J(0)(1-T/T_0)$ et les courbes continues à une forme $J=J(0)\exp(-T/T_0)$.

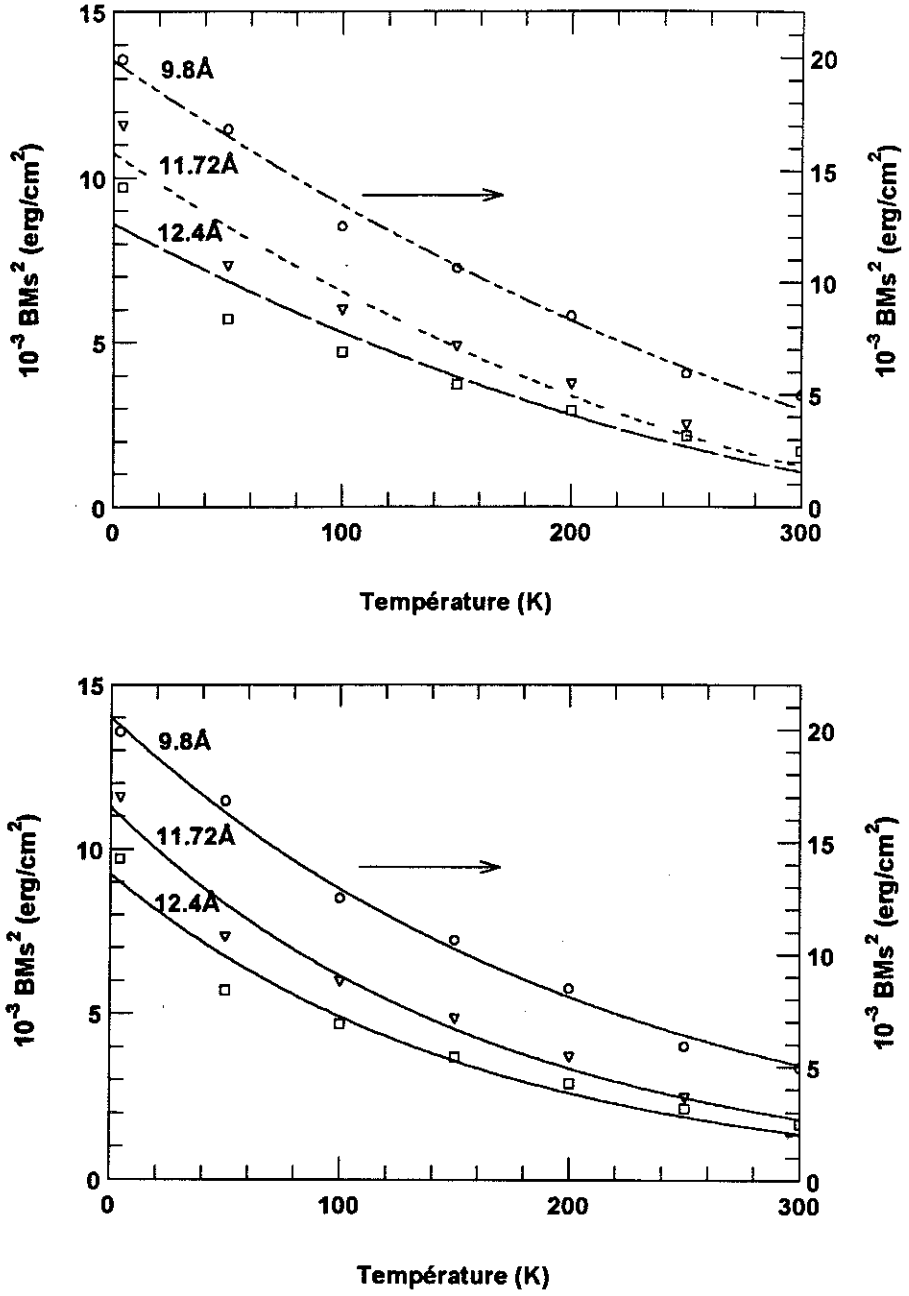


Figure IV.17: Dépendance thermique du terme biquadratique pour 3 épaisseurs d'Ag. Les courbes en pointillés résultent d'un ajustement de la forme $B=B(0)(1-T/T_0)^2$ et les courbes continues de $B=B(0)(\exp(-2T/T_0))$.

L'emploi de variations thermiques en exponentielles pour les termes de couplage présente 2 avantages: 1) Il « colle » mieux aux mesures expérimentales. 2) Il est conforme au modèle physique de Bruno et paraît donc plus réaliste.

Le tableau suivant résume les différentes valeurs des paramètres d'ajustement des différents modèles.

	JMs^2				BMs^2			
modèle	$J(0)(1-T/T_0)$		$J(0)\exp(-T/T_0)$		$B(0)(1-T/T_0)^2$		$B(0)\exp^2(-T/T_0)$	
Ep (Å)	J(0)	T_0	J(0)	T_0	B(0)	T_0	B(0)	T_0
9.8	69	598	69	452	20	564	20	430
11.72	22	502	22	376	11	453	11	331
12.4	6.1	412	6.3	253	9.2	462	9.24	317

Tableau IV.6: Valeurs des paramètres des ajustements des variations thermiques de J et B. Les valeurs de J(0) et B(0) sont en 10^{-3}.erg/cm^2 et celles de T_0 en K.

Ces lois exponentielles pour J et B nous permettent de justifier la dépendance thermique de ε, utilisée pour la figure IV.14.

Pour résumer les points importants de la contribution biquadratique basse température dans les systèmes Ag/FeNi on peut citer:
1)la mise en évidence de **variations thermiques différentes** pour J et B avec l'apparition d'états non colinéaires aux basses températures dans des systèmes à forts couplages bilinéaires.
2)Un **alignement à 90°** des aimantations lorsque B est infiniment grand devant J.
3)Les **variations de B comme le carré de J**, avec un déphasage dans la dépendance en épaisseur (évidence d'un terme B non nul pour J nul).
4)Des **variations thermiques** de J en exponentielle de T conformément au modèle de Bruno, et celles **de B en carré d'une exponentielle de T**.

Le dernier critère semble privilégier une **origine intrinsèque** telle que celle décrite par Bruno[3] dans un modèle récent où il prévoit l'existence d'un terme biquadratique par suite de réflections multiples aux interfaces.
Assimilant le nuage électronique dans la couche non magnétique, à une onde non polarisée en spin, il considère qu'au niveau des couches magnétiques cette onde est partiellement réfléchie et devient polarisée en spin par l'interaction avec la couche magnétique (même phénomène que la diffusion dépendante du spin). Cette onde qui peut subir de multiples réflections aux interfaces métal M/NM va établir une onde stationnaire oscillante et asymétrique en spin. Cette nouvelle image des interactions entre couches permet de faire apparaître un terme J classique, mais aussi un terme biquadratique qui présente les trois derniers critères que nous avons mis en évidence expérimentalement.
Néanmoins on relève deux divergences importantes entre nos mesures et le modèle:
1) l'amplitude de B que nous déterminons est bien supérieure au modèle, puisqu'il prévoit une amplitude de B inférieure au 1/1000 de J, ce qui ne permettrait aucune mise en évidence expérimentale.
2) Nous observons un déphasage entre J et B non prédit, mais nécessaire pour expliquer l'existence d'un terme biquadratique aux zéros de J.

Ces deux différences nous poussent à rechercher une origine différente vérifiant mieux nos critères expérimentaux.

V.C. Des impuretés à l'origine du terme B...

Le modèle des spins indépendants (loose spins) de Slonczewski a été utilisé avec succès pour l'origine du terme biquadratique dans des multicouches épitaxiées de Fe/Al et Fe/Au.[8] Ce modèle est basé sur la présence d'impuretés paramagnétiques au sein du métal non magnétique ou aux interfaces, couplées aux couches ferromagnétiques via des interactions de type RKKY, qui apportent une contribution supplémentaire au couplage entre couches. Nous avons vu dans le paragraphe IV que les « pin-holes » étaient responsables du premier terme biquadratique. En augmentant l'épaisseur d'Ag leur nombre et leur diamètre ont rapidement chuté si bien qu'on ne détecte plus leur présence au dessus de 10Å. Néanmoins la présence de ces discontinuités nous montre que la couche d'Ag peut être polluée par des impuretés magnétiques. Au dessus de 10Å les ponts ont effectivement disparu mais il est vraisemblable que des impuretés magnétiques isolés demeurent au sein de la couche d'Ag, ce qui validerait le modèle de Slonczewski.
La contribution au couplage intercouche des impuretés est obtenue au travers de l'énergie libre f du potentiel d'interaction U (de type RKKY) qui couple les impuretés paramagnétiques aux couches ferromagnétiques. Ce potentiel d'interaction U dépend de l'angle θ entre les aimantations des couches par la relation:

$$U(\theta) = \left(U_1^2 + U_2^2 + 2U_1U_2\cos\theta\right)^{1/2} \qquad (14)$$

où $U_{1,2}$ correspondent aux interactions des couches ferromagnétiques 1,2 avec les impuretés. Compte tenu de l'isolement des impuretés ce couplage est relativement faible et seules les excitations thermiques des spins isolés doivent être prises en compte. L'énergie libre pour chaque spin isolé s'écrit donc:

$$f(U,T,\theta) = -k_BT\,ln\left(\frac{sinh\left\{\frac{(2N+1)U(\theta)}{2k_BT}\right\}}{sinh\left\{\frac{U(\theta)}{2k_BT}\right\}}\right) \qquad (15)$$

où N correspond au nombre d'atomes composant l'impureté. L'énergie libre macroscopique F(θ) par unité de surface de la couche non magnétique ($F(\theta)=c/a^2 f(\theta)$ avec c=concentration d'impuretés et a distance interatomique dans l'Ag) peut s'écrire comme un développement en puissance du cosinus:

$$F(\theta) = J_0 - J_1 \cos\theta + J_2 \cos^2\theta + \ldots \qquad (16)$$

On retrouve ainsi la formulation de l'énergie de couplage entre couches (eq (3)); le terme J_2 étant l'équivalent du terme biquadratique. J_2 s'exprime à partir de $F(\theta)$ comme la différence entre les énergies moyennes des deux alignements colinéaires ($\theta=0,\pi$) et l'énergie de l'alignement orthogonal ($\theta=\pi/2$) soit:

$$J_2 = -\frac{c}{2a^2}\left[f(U,T,\theta=0) + f(U,T,\theta=\pi) - 2f\left(U,T,\theta=\frac{\pi}{2}\right)\right] \qquad (17)$$

En réintroduisant l'éq (15) dans (17) on obtient une équation de J_2 analytique qui permet un ajustement des dépendances thermiques avec deux paramètres c et U/k_BT. Si la dépendance thermique du terme biquadratique est purement exponentielle, Slonczewski considère que les impuretés sont isolés au sein de la couche non magnétique; on prendra alors $|U_1|=|U_2|$ en faisant l'hypothèse que les impuretés sont à mi-distance des deux interfaces. Si au contraire la dépendance thermique montre un plateau à basse température, il privilégie des impuretés interfaciales et $|U_1|\neq|U_2|$. On retombe alors sur un problème de rugosité d'interface. Dans nos échantillons la première solution semble tout à fait raisonnable vu le caractère exponentiel de nos caractéristiques B(T).
La figure suivante montre des ajustements des dépendances thermiques des 3 échantillons de la figure IV.17 par le modèle des spins isolés au sein de la couche d'Ag.

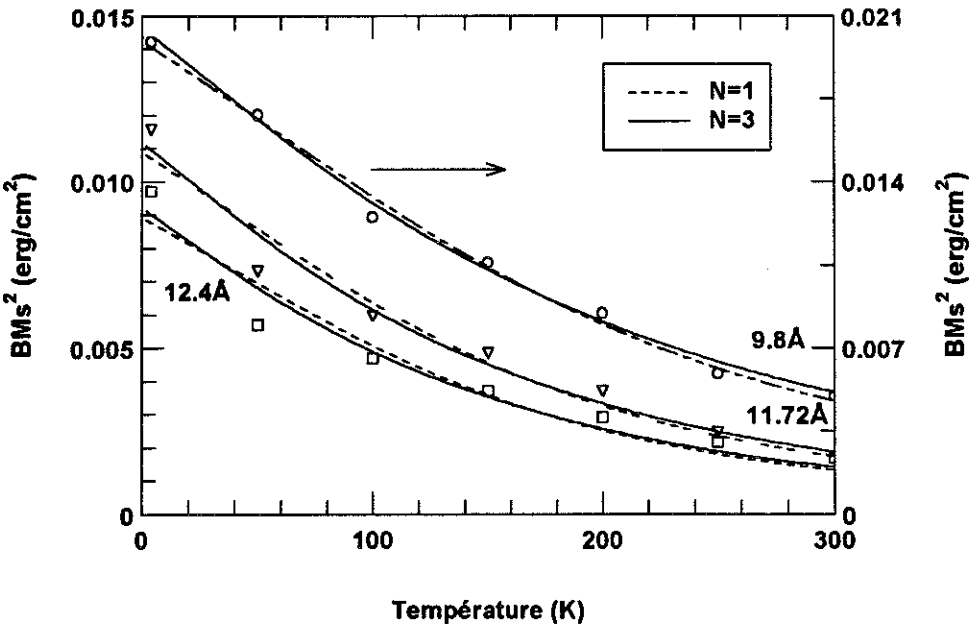


Figure IV.18: Ajustement de la dépendance thermique de B par le modèle de spins isolés. Les courbes en pointillés correspondent à des atomes isolés et celles en continues à des clusters de 3 atomes.

Ce modèle rend tout à fait compte de la variation thermique de B et devient indiscernable de l'ajustement en exponentielle à a partir de clusters formés de 3 atomes. Les paramètres des ajustements sont regroupés dans le tableau suivant.

Ep d'Ag (Å)	N=1		N=5		N=10	
	conc	U_1/k_B (K)	conc	U_1/k_B (K)	conc	U_1/k_B (K)
9.8	0.00071	403	0.00042	139	0.0004	76
11.72	0.00049	317	0.0003	106	0.0003	58
12.4	0.00041	306	0.00026	101	0.00024	55

Tableau IV.7: Paramètres d'ajustement de la figure IV.18. N est le nombre d'atomes moyen par cluster.

Les paramètres que nous obtenons sont tout à fait cohérents avec ceux de Slonczewski dans le cas du système Fe/Au.[8] Cependant les fortes valeurs du rapport U_1/k_B ne sont pas bien compatibles avec l'hypothèse d'un très faible couplage entre les couches et les impuretés. En augmentant le nombre d'atomes dans les impuretés on diminue notablement ce couplage; ainsi avec 3 atomes on le divise par deux, et avec 10 atomes par clusters le couplage devient très faible (entre 50 et 80K). Schäfer dans un système Fe/Ag/Fe où un coin de Fe est inséré au centre de la couche d'Ag (18Å) trouve dans son ajustement un rapport U_1/k_B=10K en considérant 5 atomes par cluster[14], ce qui est cohérent avec nos résultats si on considère la plus grande épaisseur d'Ag.

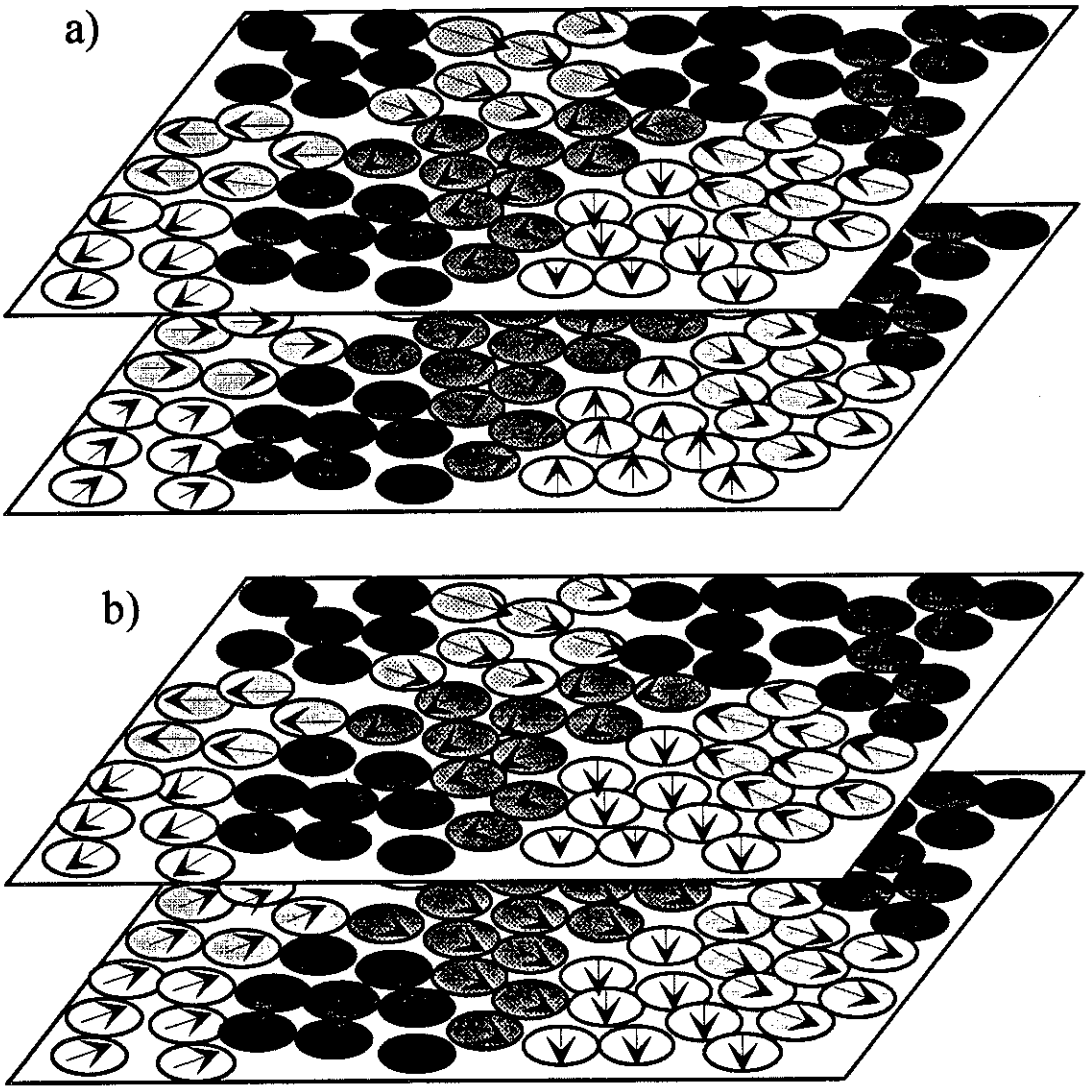
Ce modèle de spins isolés semble le plus vraisemblable comme origine du terme biquadratique car il vérifie tous les critères expérimentaux. Même le problème du déphasage n'a plus lieu d'être car J_2 par définition n'a aucune relation de phase avec le couplage inter-couches.

V.D. ...Ou une structure en domaines.

Une autre image structurale pourrait expliquer ce terme biquadratique. Les études structurales (RX, AFM) montrent une nature polycristalline des couches, formée de grains dont la taille est fortement dépendante des conditions de dépôt. Si on considère que les joints de grains sont des zones suffisamment désordonnées pour perturber le couplage d'échange (Heisenberg) la compétition entre les énergies d'anisotropie d'un domaine de taille L et de couplage entre domaines peut engendrer une configuration où les domaines sont limités à quelques grains et qui présente une répartition aléatoire des directions d'aimantations entre domaines.
Si on introduit le couplage inter-couche J, la structure en domaines dans les couches ne va pas être perturbée, mais J va intervenir sur la corrélation entre les aimantations de domaines en vis à vis dans la structure multicouche. Ainsi pour un couplage J positif (couplage AF) les aimantations dans chaque couche sont alignées antiparallèlement (fig IV.19 a). Lorsque J

s'affaiblit la direction des aimantations dans les domaines est liée à la compétition entre les énergies de couplage inter-couche et d'anisotropie des domaines; ce qui peut engendrer une structure non colinéaire des aimantations (à relier à la fermeture progressive des aimantations des couches). Pour J=0 les directions d'aimantation sont aléatoires entre domaines d'une même couche mais aussi entre couches (fig IV.19 b). Enfin la structure obtenue pour un couplage inter-couche ferromagnétique est équivalent au cas AF mais avec un alignement parallèle des aimantations des domaines en vis à vis (fig IV.19 c).

Au niveau de l'amplitude de GMR, on observe une amplitude maximale dans le cas a) puisque les aimantations sont purement antiparallèles. Dans le cas b) l'orientation aléatoire des aimantations permet de récuperer 50% de l'amplitude maximale puisque la GMR est proportionelle au $<\cos^2\varepsilon/2>$. En contre partie le champ de saturation est simplement lié à l'élimination de la structure en domaines; il pourra donc être encore minimisé en jouant sur l'anisotropie des couches. Cette configuration est propice à une forte sensibilité, ce qui est intéressant pour les applications.



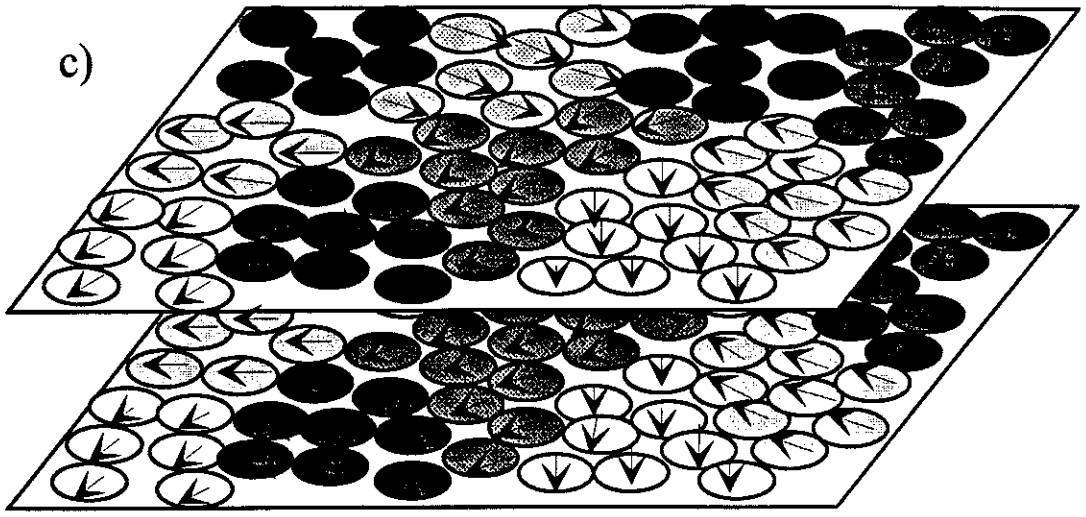


Figure IV.19: Evolution des configurations magnétiques en champ nul selon l'intensité de J. a) J antiferro fort; b) J=0, c) J ferro fort.

Dans le cas c) les corrélations ferromagnétiques détruisent rapidement l'effet GMR et on n'observe plus que l'effet d'AMR.

La comparaison des images AFM et MFM permettraient d'avoir une idée de la taille des domaines par rapport à la taille des grains et ainsi de juger de l'atténuation du couplage d'échange introduit par les joints de grains. Malheureusement le laboratoire ne dispose pas encore de ce type d'équipement...

VI. OPTIMISATION DE LA STRUCTURE MAGNETIQUE POUR DES CAPTEURS A FORTE SENSIBILITE.

Le développement de capteurs magnéto-résistifs basés sur les multicouches impose deux contraintes:

1) Une forte sensibilité avec une caractéristique assez linéaire.

2) Une tenue thermique au moins jusqu'à 250°C pour éviter la dégradation lors de certaines étapes de fabrication des capteurs.

Les échantillons ne se déstratifiant qu'au dessus de 280°C (cf ChIII), la deuxième condition est parfaitement remplie. Nous avons vu d'autre part que les configurations magnétiques à J=0 permettaient de conserver une GMR assez importante dans des champs de saturation très réduits puisque un des deux termes de couplage était annulé. Les configurations J=0 ou J#0 sont donc tout à fait propices à de fortes sensibilités. L'étape suivante est de suivre l'évolution des couplages J et B (B étant maintenant associé soit aux spins isolés soit à la structure en domaines) lors des traitements thermiques et d'essayer de trouver une gamme d'épaisseurs d'Ag pour laquelle la configuration est optimisée après recuit à 250°C.

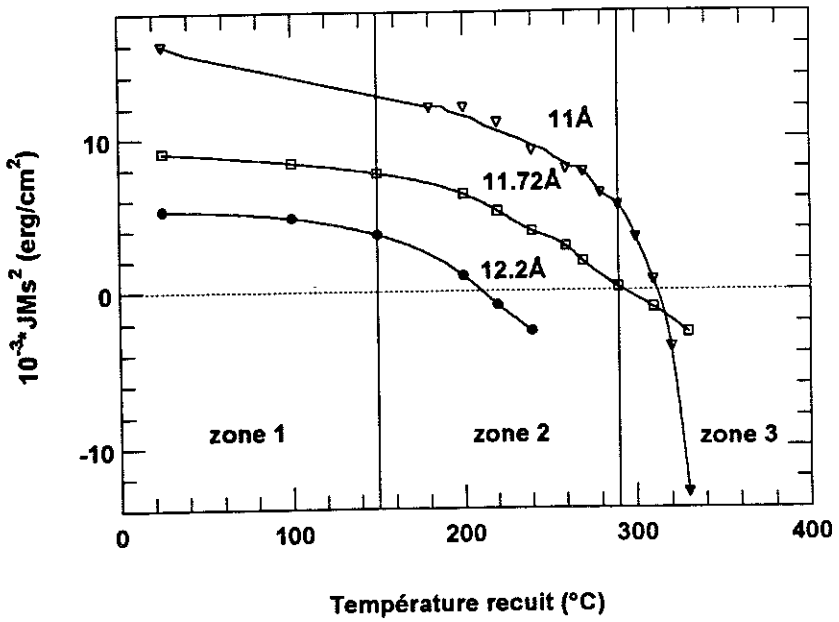


Figure IV.20: Variation des termes J à 300K pour 3 échantillons à fortes épaisseurs d'Ag en fonction de la température de recuit. On détermine 3 domaines de température selon les variations de J: (1) faibles variations de J, (2) décroissance linéaire de J et (3) où J chute rapidement du fait de la déstratification (seulement visible pour 11Å).

La figure précédente nous montre les variations du terme bilinéaire en fonction de la température de recuit pour trois échantillons à fortes épaisseurs d'Ag. On peut aisément dégager trois zones: Jusqu'aux environs de 150°C les termes J des trois couches n'évoluent que très faiblement. Entre 150°C et 290°C la diminution des termes J est à corréler avec la résorption de la rugosité des interfaces. L'épaisseur minimale d'Ag augmentant, les couplages RKKY diminuent suivant l'équation de Bruno. Au dessus de 290°C on note une rapide chute du terme J pour l'échantillon le plus mince en Ag, liée à l'apparition de ponts ferro entre les couches de Permalloy. Cette réapparition de « pin-holes » pour les fortes épaisseurs d'Ag est simplement le fait de la déstratification des couches. Il est donc normal de voir apparaître ce phénomène en priorité dans les échantillons à faible épaisseur d'Ag.

La figure IV.21 montre que les termes B de ces même échantillons corrélent tout à fait les explications que nous venons d'apporter. En effet on constate une forte augmentation des valeurs des termes B au dessus de 290°C, ce qui est une signature indéniable de l'apparition de discontinuités dans les couches non magnétiques. L'autre point intéressant est la très bonne stabilité des amplitudes du terme B avec la température de recuit jusqu'au moment de la déstratification, ce qui signifie que l'on n'aura pas d'augmentation du champ de saturation si on se place dans une configuration où J=0 à 300K ou à plus haute température de recuit. Si on recherche maintenant la gamme des épaisseurs d'Ag qui permettent une optimisation du système à 250°C (J=0), on voit qu'elle se réduit à une épaisseur unique de 12Å; il sera bien difficile de fabriquer des séries d'échantillons dont l'épaisseur d'Ag soit aussi précise. Heureusement cette condition peut être élargie à J#0, si on étudie la sensibilité des systèmes.

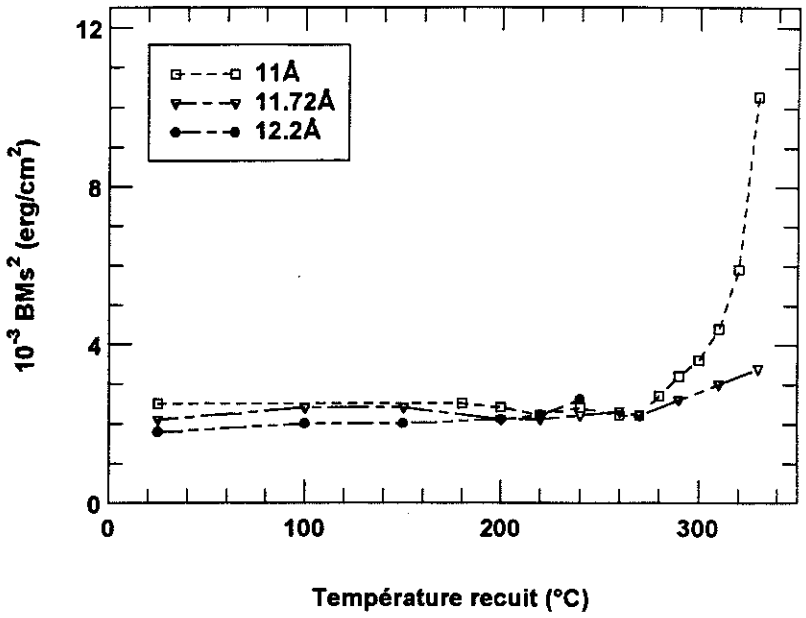


Figure IV.21: Evolution des termes B à 300K pour les trois échantillons de la figure précédente.

En effet, comme le révèle la figure IV.22, la sensibilité montre un palier d'environ 40°C de large, pour lequel la sensibilité reste constante. Ceci signifie que même lorsque J n'est pas parfaitement nul le gain d'amplitude de GMR compense l'augmentation du champ de saturation. Ainsi au lieu d'une seule épaisseur d'Ag, on peut élargir un peu la fenêtre entre 11.8 et 12.1Å. Ces valeurs autorisent un gradient lors du dépôt de 2.5% sur l'épaisseur d'Ag, ce qui est très faible, et que l'on ne peut atteindre pour l'instant...

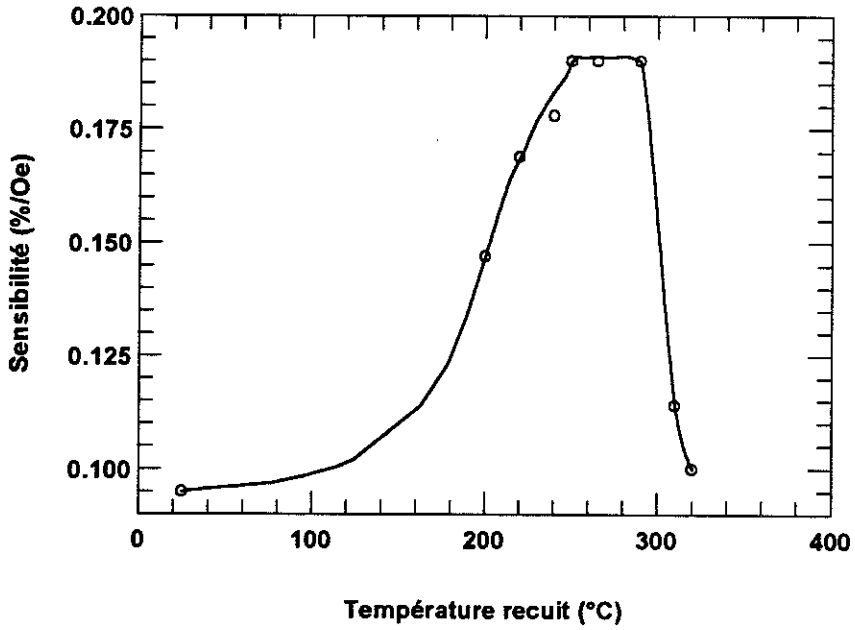


Figure IV.22: Evolution de la sensibilité avec la température de recuit à 300K pour l'échantillon à 11.72Å d'Ag. La ligne continue est un guide pour les yeux.

Toujours dans l'optique d'une meilleure sensibilité, nous avons tenté de réduire l'amplitude de B qui fixe le champ de saturation dans la configuration où J=0. Ce terme B qui est associé à la présence d'impuretés dans la couche d'Ag ou à l'énergie d'anisotropie des domaines magnétiques, peut être réduit si on parvient à modifier la qualité cristallographique des couches. En modifiant les conditions de dépôt ou les techniques de dépôt (PC triode ou RF) on pourrait modifier ce paramètre. Nous avons donc fabriqué quelques couches en PC RF avec les même caractéristiques d'épaisseurs pour comparer les sensibilités.

La comparaison de deux courbes de transport à 300K, dans la configuration J=0, pour des couches préparées selon les deux méthodes, montre un très net adoucissement du permalloy dans le cas de courants RF (Figure IV.23) pour une interprétation par l'énergie d'anisotropie des domaines ou une diminution notable du nombre d'impuretés dans la couche d'Ag. En effet le champ de saturation est pratiquement divisé par deux. La GMR un peu plus faible, pour des raisons encore mal comprises, pour la pulvérisation RF garde tout de même une valeur très suffisante pour permettre d'obtenir une très forte sensibilité pour ce matériau. Celle ci qui atteignait déjà presque 0.2%/Oe (sensibilité maximale dans la zone linéaire) pour les couches préparées en courant continu, frôle désormais les 0.3%/Oe, ce qui constitue une valeur remarquable pour les systèmes en multicouches.

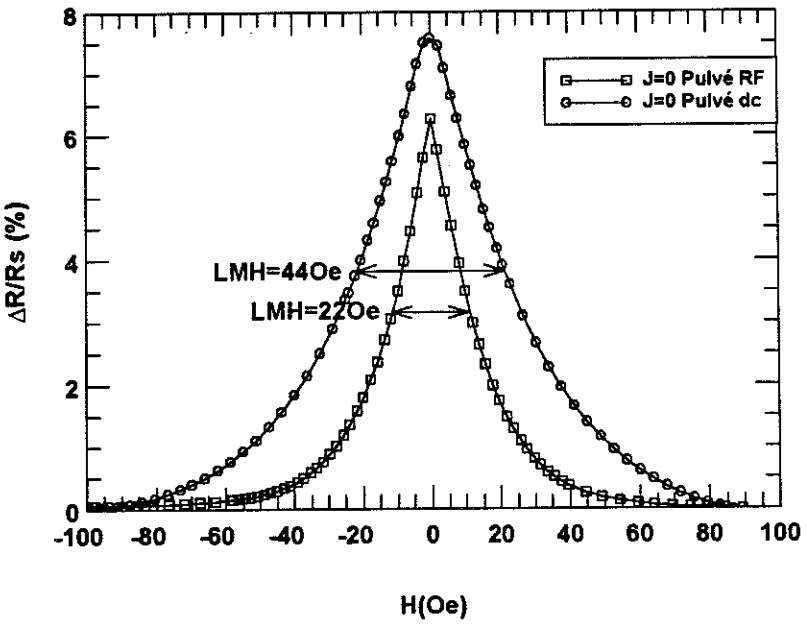


Figure IV.23: Comparaison des caractéristiques de transport dans des multicouches préparées par pulvérisation cathodique en courant continu (ronds) ou en courant RF (carrés).

La littérature nous montre que la sensibilité des systèmes multicouches s'améliore lorsqu'on se place au second voire troisième pic de couplage, grâce à la réduction du terme de

couplage RKKY et une atténuation limitée de l'amplitude de GMR. Dans notre approche nous déterminons d'emblée **la plus forte sensibilité du système**, puisque nous n'avons jamais à vaincre un quelconque couplage inter couches (donc H_{sat} est minimum) et nous gardons 50% de l'amplitude maximum de GMR.

Des systèmes en multicouches qui atteignent ou dépassent nos valeurs de sensibilité ont été élaborés par des méthodes sous ultra-vide, comme pour le FeNi/Au.[15] Dans ce cas le FeNi déposé a une bonne structure cristallographique et n'est plus constitué d'un assemblage de grains. Les couches sont alors constituées de très grands domaines qui disparaissent en quelques Oersteds. Au quatrième pic de couplage, le terme J est si faible que le champ de saturation descend au dessous de 5 Oe, et la sensibilité dépasse 0.9%/Oe. Malheureusement ce type d'élaboration par EJM est bien trop lourd pour des applications.

Hylton[16] à IBM a réussi a obtenir des sensibilités dépassant les 1%/Oe par traitement thermique sur des multicouches Ag/FeNi préparées par pulvérisation cathodique. Pour de grandes épaisseurs d'Ag (≅40Å) le couplage entre couches est ferro, la GMR est donc nulle. Mais lors de recuits au dessus de 300°C une GMR de 3 à 4% réapparait dans des champs de saturation extrèmement faibles entre 2.75 et 5Oe. Hylton explique cet effet par des interactions magnéto-statiques qui deviennent plus importantes lors de la déstratification des couches et qui entrent en compétition pour casser le couplage ferro. Le faible désalignement des aimantations entre grains suffit à créer la GMR. De plus les interactions MS dominant à peine le couplage ferro, un très faible champ extérieur suffit à réaligner l'ensemble d'où les très faibles champs de saturation observés. Ce système très séduisant au niveau de la sensibilité ne peut être appliqué, car l'activation du capteur magnétique par un recuit au dessus de 300°C détruit tous les autres constituants du capteur (concentrateur de flux, ...).

CONCLUSION

L'analyse systèmatique des caractéristiques magnétiques de nos systèmes multicouches nous a permis de bien appréhender tous les types de couplage régissant les différentes configurations magnétiques rencontrées. Ainsi nous avons pu mettre en évidence que l'existence de **termes biquadratiques** était effectivement responsable des réductions de l'amplitude de GMR et des courbures observées dans le Ch.III.

Ces termes biquadratiques ont pu être associés à des origines physiques bien distinctes comme:
*des **discontinuités ou « pin-holes »** dans la couche non magnétique lorsque son épaisseur est inférieure à 10Å.
*La présence **d'impuretés isolées** au sein de la couche d'Ag au dessus de 10Å.
*Des **configurations en domaines limités** liées à la compétition entre l'anisotropie du domaine et l'échange entre domaine.

L'introduction des termes biquadratiques nous a permis de corriger les valeurs des termes J, qui étaient largement sous estimées dans le chapitre précédent, avec pour conséquence un meilleur accord des paramètres de l'oscillation du couplage avec les valeurs de la littérature.

Enfin l'utilisation et l'optimisation des structures en domaines dans la configuration J=0 a permis de développer des **systèmes à très forte sensibilité** (0.2 à 0.3%/Oe), dont le point de fonctionnement est ajustable à toutes températures de recuit entre 300 et 550K, pour la mise au point de capteurs magnéto-résistifs performants.

BIBLIOGRAPHIE

[1] M.Rührig, R.Schäfer, A.Hubert, R.Mosler, J.A.Wolf, S.Demokritov, P.Grünberg, Phys.Stat.Sol. (a), **125**, (1991), 635
[2] A.Fuss, S.Demokritov, P.Grünberg, W.Zinn, J.Magn.Magn.Mater., **103**, (1992), L221
[3] J.Barnas, P.Grünberg, J.M.M.M., 121, (1993), 326; J.C.Slonczewski, J.Magn.Magn.Mater, 126, (1993), 374; P.Bruno, J.Magn.Magn.Mater., **121**, (1993), 248
[4] J.Barnas, J.M.M.M., **123**, (1993), L21; J.Inoue, J.Magn.Magn.Mater., **136**, (1994), 233
[5] J.C.Slonczewski, Phys.Rev.Lett., **67**, (1991), 3172
[6] J.Unguris, R.L.Celotta, D.T.Pierce, Phys.Rev.Lett., **67**, (1991), 140
[7] S.Demokritov, E.Tsymbal, P.Grünberg, W.Zinn, I.K.Schuller, Phys.Rev.B, **49**, (1993), 720
[8] J.C.Slonczewski, J.Appl.Phys., **73**, (1993), 5957; J.C.Slonczewski, J.Magn.Magn.Mater., **150**, (1995), 13
[9] H.Fujiwara, M.R.Parker, J.Magn.Magn.Mater., **135**, (1994), L23
[10] B.Dieny, V.S.Speriosu, S.S.P.Parkin, B.A.Gurney, D.R.Wilhoit, D.Mauri, Phys.Rev.B, **43**, (1991), 1297; A.Chaiken, P.Lubitz, J.J.Krebs, G.A.Prinz, M.Z.Harford, Appl.Phys.lett., **59**, (1991), 240
[11] J.F.Bobo, H.Fisher, M.Piecuch, Mat.Res.Soc.Symp.Proc., **313**, (1993), 467
[12] B.Rodmacq, K.Dumesnil, P.Mangin, M.Hennion, Phys.Rev.B, **48**, (1993), 3556
[13] C.J.Gutierrez, J.J.Krebs, M.E.Filipkowski, G.A.Prinz, J.Magn.Magn.Mater, **116**, (1992), L305
[14] M.Schäfer, S.Demokritov, S.Müller-Pfeiffer, R.Schäfer, M.Schneider, P.Grünberg, W.Zinn, J.Appl.Phys.Lett., **77**, (1995), 6432
[15] S.S.P.Parkin, R.F.C.Farrow, R.F.Marks, A.Cebollada, G.R.Harp, R.J.Savoy, Phys.Rev.Lett., **72**, (1994), 3718
[16] T.L.Hylton, K.R.Coffey, M.A.Parker, J.K.Howard, Science, Vol **261**, (1993), 1021

PARTIE C

Les systèmes granulaires

CHAPITRE V

SYSTEMES HYBRIDES: « LES MULTICOUCHES GRANULAIRES »

INTRODUCTION.....129

I. EVOLUTION STRUCTURALE DES MULTICOUCHES.....129

II. UNE STRUCTURE MAGNETIQUE « HYBRIDE ».....130
II.A. Propriétés magnétiques à 300K.....130
II.B. Définition du superparamagnétisme et corrélation avec la microstructure.....133

III. LES TRAITEMENTS THERMIQUES STABILISENT LA STRUCTURE GRANULAIRE.....137

CONCLUSION.....139

INTRODUCTION

Les systèmes à forte sensibilité obtenus par Hylton sur ses multicouches granulaires n'étant pas envisageables pour les applications, compte tenu des très hautes températures de recuit nécessaires (T_{rec}>300°C), il faut envisager une méthode plus « douce » pour fabriquer des systèmes équivalents. En réduisant l'épaisseur de la couche magnétique par exemple, on peut imaginer que les couches ne vont pas rester continues, mais vont former une structure de couches « granulaires » ressemblant au système de Hylton. Nous avons appliqué cette idée aux multicouches Ag/FeCo qui présentaient l'avantage d'avoir les meilleures propriétés magnétiques pour des épaisseurs de CoFe très réduites (7Å), donc très près de la limite de continuité.

I. EVOLUTION STRUCTURALE DES MULTICOUCHES.

Pour cette étude trois séries d'échantillons ont été élaborées par pulvérisation cathodique triode en courant continu. L'épaisseur de CoFe a été progressivement réduite de 7 à 2Å (épaisseurs moyennes déduites des mesures RX) et les gradients d'Ag pour chaque série ont été ajustés pour encadrer le premier pic de couplage AF.
L'évolution de la structure multicouche a été principalement suivie par rayons X aux petits angles. La figure V.1 présente deux spectres de diffraction caractéristiques pour des échantillons avec 3 et 2Å de CoFe.

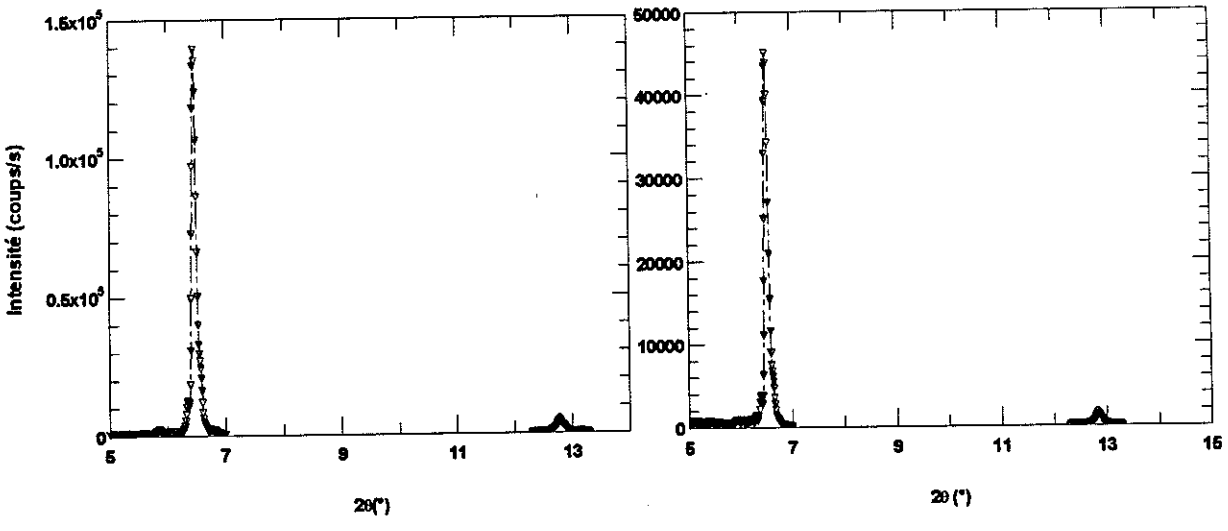


Figure V.1: Spectres de diffraction aux petits angles de multicouches Ag/FeCo avec 3Å de CoFe (gauche) et 2Å de CoFe (droite).

Analyse des spectres:

- La présence de pics de Bragg jusqu'au deuxième ordre quelque soit l'épaisseur de CoFe est le signe indéniable que **l'empilement en couche est toujours bien défini**.
- La faible périodicité magnétique (Λ<20Å) est responsable du grand écart entre les pics de Bragg, on ne peut donc espérer en observer plus de deux. Cependant la forte atténuation d'intensité entre les deux premiers pics pour les échantillons présentés révèle une rugosité importante qui pourrait être le reflet de **discontinuités des couches magnétiques**. Mais la seule mesure aux RX ne permet pas de le vérifier.

Des mesures complémentaires en microscopie ou en RMN auraient été bienvenues pour confirmer la présence ou non de discontinuités dans les couches magnétiques. Malheureusement trop peu d'échantillons ont été fabriqués pour permettre la multiplicité des études structurales. Malgré tout des mesures de RMN effectuées sur des systèmes « hybrides » à base de multicouches Ag/Co,[1] préparées par pulvérisation magnétron, peuvent nous donner une idée sur l'évolution structurale des couches magnétiques vu la grande similarité des deux systèmes. Van Alphen et de Jonge ont observé un signal de couches épaisses jusqu'à des épaisseurs de 4Å de Co, ce qu'ils expliquent par la formation de grains, en forme de disque, de grandes tailles (diamètre d'environ 50Å) plutôt que d'atome de Co intimement mélangé à l'Ag.

Pour résumer; nos couches gardent une structure alternée à toute épaisseur de CoFe, mais il est probable que les couches magnétiques se disloquent au dessous de 6Å sous forme de disques de grands diamètres.

II. UNE STRUCTURE MAGNETIQUE « HYBRIDE ».

II.A. Propriétés magnétiques à 300K.

Les mesures magnétiques vont révèler la vraie nature de nos couches, car les grains s'ils existent, ne vont pas suivre le même comportement magnétique que des couches continues. Les mesures d'aimantation effectuées à température ambiante sur trois échantillons appartenant à chaque série montrent des dépendances en champ radicalement différentes (fig V.2). Alors que l'échantillon avec 7Å de CoFe a un comportement classique d'aimantation de couches continues couplées AF (mise à part la légère courbure que nous avons expliquée dans le chapitre précédent), l'échantillon avec 3Å de CoFe montre un **comportement « hybride »** avec deux régimes: En champ faible on retrouve le comportement de couches continues, mais en champs plus forts l'aimantation devient très difficile à saturer. L'explication la plus cohérente fait intervenir de larges zones de couches magnétiques continues ferromagnétiques et quelques zones de **couches magnétiques discontinues superparamagnétiques**. En effet les grains superparamagnétiques ont leur aimantation qui fluctue thermiquement et seule

l'application d'un fort champ magnétique (H_{sat}>14kOe) parvient à les aligner; ils sont donc responsables du second régime. Une analyse plus fine des caractéristiques (cf Ch suivants) montrerait en outre qu'il existe toute une distribution de taille de grains. Pour cet échantillon, les proportions de zones continues et discontinues peuvent être évaluées, à partir du coude entre les deux régimes, respectivement à 2/3 et 1/3.

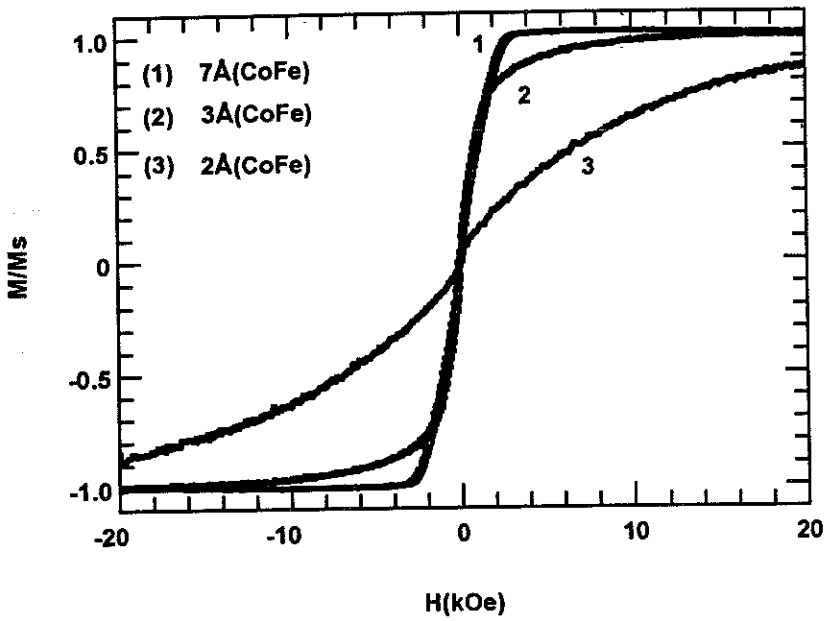


Figure V.2: Mesures d'aimantation à 300K pour trois échantillons de composition $[CoFe\ xÅ/Ag\ 12.4Å]_{50}$.

L'échantillon avec 2Å de CoFe ne présente plus, pour sa part, d'évidence de zones continues; il doit être exclusivement formé de grains superparamagnétiques dont la distribution de taille doit être très large puisqu'il a été impossible de saturer l'échantillon dans 20kOe. Vu que l'épaisseur moyenne de couche est inférieure à la distance inter-planaire (2.11Å), c'est une couche mono-atomique que nous avons tenté de déposer; il est donc tout à fait plausible qu'elle soit formée d'îlots de CoFe. Une croissance purement 2D n'est pas envisageable pour un dépôt par pulvérisation cathodique. Ces premières mesures magnétiques ont donc confirmé la structure discontinues de nos multicouches au dessous de 6Å de CoFe, comme nous le pressentions d'après l'analyse structurale.

Les mesures de transport à 300K de chaque série corroborent parfaitement l'analyse que nous venons de donner précédemment (cf fig V.3). Laissons de côté la série avec 7Å de CoFe déjà largement commentée dans les chapitres précédents pour nous attarder sur les deux autres.

Série avec 3Å de CoFe:

On retrouve pour cette série les deux régimes définis précédemment par les mesures d'aimantation. En champ faible on observe le **phénomène de GMR de couches continues**

avec une rapide chute de la résistivité et à plus forts champs les zones discontinues sont responsables d'une **magnéto-résistance de désordre de spin**, telle que celle décrite par de Gennes et Friedel pour les substances ferromagnétiques autour de la température de Curie.
L'amplitude de MR est bien plus faible que pour la série avec 7Å de CoFe puisqu'on ne relève qu'un maximum de 15% ($\Delta\rho/\rho_0$) contre 35%. On peut apporter deux raisons à cette réduction:
1) les zones discontinues contribuent peu à la MR globale car la magnéto-résistance de désordre de spin est de faible amplitude, comparé à l'effet GMR.
2) Les grains superparamagnétiques se comportent comme autant de centres diffuseurs pour les électrons de conduction. Les lpm sont donc réduits ce qui limite l'amplitude de GMR.

Pour en finir avec cette série signalons que l'amplitude ne reste pas constante avec l'épaisseur d'Ag contrairement à la série précédente. En effet le gradient d'épaisseur sur le CoFe même s'il est faible, est suffisant pour provoquer la disparition des zones continues. Ainsi les courbes les plus extérieures qui ont les épaisseurs les plus fines ne présentent plus deux régimes mais un seul purement superparamagnétique. Cette série est donc réellement la série « hybride ».

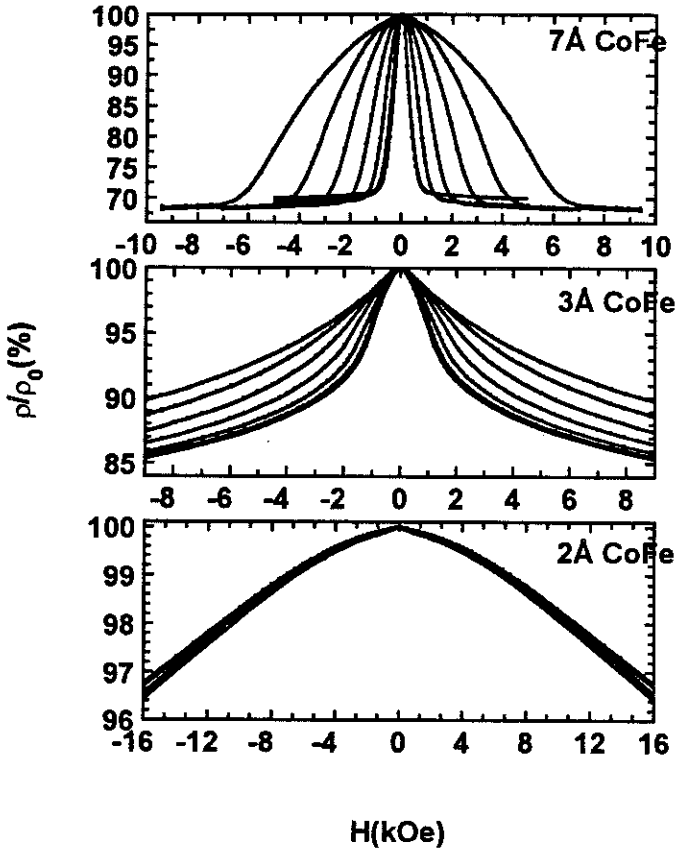


Figure V.3: Mesures de transport à 300K pour les trois séries de multicouches. Les épaisseurs de CoFe sont données en légende et les épaisseurs d'Ag varient de 10.2Å au centre à 12.4Å à l'extérieur.

Série avec 2Å de CoFe:

Cette série qui correspond purement au cas de grains superparamagnétiques a des propriétés de transport typique d'un système granulaire: très faible amplitude (<4%) et pas de saturation observée.

On n'observe plus non plus de dépendance avec les épaisseurs d'Ag car tout effet de GMR a disparu.

II.B. Définition du superparamagnétisme et corrélation avec la microstructure.

Pour vérifier le comportement superparagnétique des grains nous avons mesuré l'aimantation des multicouches avec 2Å de CoFe à différentes températures par effet Hall. L'utilisation de l'effet Hall peut paraître étonnant, mais il permet une mesure très sensible grâce à l'élimination des contributions diamagnétiques du substrat ou du porte échantillon, qui bien que faibles ne deviennent plus négligeables lors de mesures de très faibles signaux tels que ceux des systèmes superparamagnétiques. Les contributions parasites étant le fait de matériaux à forte résistivité, elles n'entrent pas en compte dans les phénomènes de transport dont l'effet Hall fait partie.

Les mesures ont été effectuées sur un carré de $3\times3mm^2$ monté en configuration Van der Pauw (prises de tension et de courant selon les diagonales) avec le champ magnétique perpendiculaire à l'échantillon.

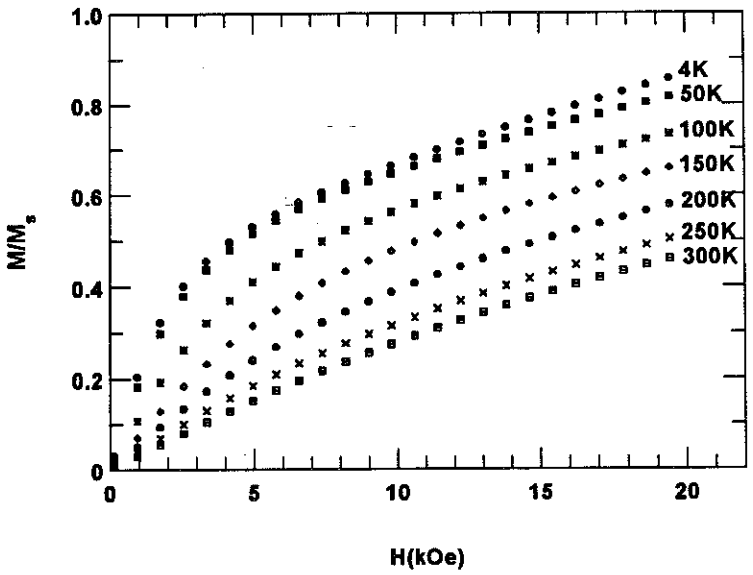


Figure V.4: Courbes d'aimantation à températures variables déduites du traitement de mesures d'effet Hall (cf texte) pour un échantillon avec 2Å de CoFe.

La résistivité de Hall R_H s'écrit de façon conventionnelle comme la somme de deux termes:

$$R_H=R_0[H+4\pi M(1-n_d)]+R_s4\pi M \qquad (1)$$

où le premier est l'effet Hall ordinaire (n_d étant le facteur de forme du champ démagnétisant) et le second est l'effet Hall anormal (ou extraordinaire) qui est directement proportionnel à l'aimantation. Dans le cas de couches continues l'éq (1) s'écrit $R_H=R_0H+cte$ dès que H est plus grand que le champ de saturation, il est alors aisé de quantifier l'amplitude de l'effet Hall ordinaire en ajustant la dépendance linéaire en H à fort champ. Lorsque l'on a un comportement superparamagnétique cette relation n'est plus valable. Par contre on peut faire l'hypothèse raisonnable qu'à fort champ seul les grains de très petites tailles ou les atomes isolés ne sont pas saturés. En prenant le comportement asymptotique d'une fonction de Langevin aux forts champs on peut écrire que l'aimantation suivra la loi:

$$\frac{M}{M_s} = 1 - \frac{k_B T}{M_s V H} \tag{2}$$

La résistivité de Hall en champs suffisamment grands s'écrira donc:

$$R_H = R_0 H + 4\pi M_s \left(1 - \frac{k_B T}{M_s V H}\right) \times \left[R_0(1 - n_d) + R_s\right] \tag{3}$$

En soustrayant cette contribution à la mesure de l'effet Hall il est possible de remonter à la forme des courbes d'aimantation à toutes températures pour une distribution de grains superparamagnétiques, en faisant l'hypothèse que R_s est indépendant de la température.

La figure V.4 montre le résultat d'un tel traitement sur un échantillon de la série avec 2Å de CoFe. Les courbes obtenues montrent une forte dépendance thermique de l'aimantation, classique pour des échantillons superparamagnétiques, mais qui n'est pas le trait le plus important pour caractériser un comportement superparamagnétique. En effet c'est plutôt le repliement selon une loi d'échelle en H/T qui caractérise le mieux ce comportement. Les aimantations doivent suivre une **loi du type Curie Weiss en H/(T-θ)** où θ est la température moyenne des interactions entre grains. Au dessous d'une certaine température appelée **température de blocage** (T_B) qui définit le moment où les temps de relaxation des aimantations des grains superparamagnétiques deviennent supérieurs au temps de mesure, cette loi n'est plus vérifiée. Compte tenu de la distribution de taille des grains il existe toute une distribution de températures de blocage et la mesure macroscopique de l'aimantation ne peut donner qu'une valeur moyenne. La figure V.5 reprend les courbes de la figure V.4 et les retrace suivant une loi de type Curie-Weiss avec une température moyenne d'interactions évaluée à -7K (les interactions entre particules sont donc faiblement antiferromagnétiques). On observe une bonne superposition des courbes jusqu'à 50K et une divergence par rapport à cette loi pour la courbe à 4K. Il semble donc que la température de blocage se situe dans la gamme de température 50K-4K, mais nous n'avons pas plus de précision. Une méthode plus précise pour définir cette température de blocage est de mesurer la dépendance thermique de l'aimantation après un refroidissement sans champ ou avec champ (voir exemples dans les

chapitres suivants). Au dessous de la température de blocage il apparait un hystèrésis entre les courbes, caractéristique du blocage.
Des comportements similaires ont été observés[2] dans les systèmes Ag/Co et Cu/Co pour des épaisseurs de Co inférieures à 6Å.

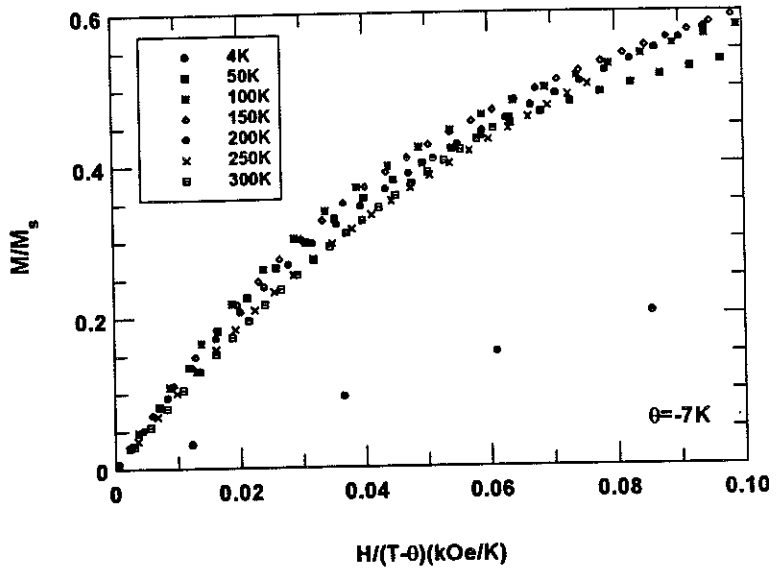


Figure V.5: Comportement superparamagnétique caractérisé par une loi de type Curie Weiss avec une température moyenne d'interactions faiblement antiferromagnétique θ=-7K

Les mesures de transport révèlent les fluctuations spatiales des aimantations dans les grains car le temps caractéristique des mesures de transport, qui est lié au temps de relaxation des électrons de conduction (10^{-12}s), est bien plus court que le temps de relaxation des grains superparamagnétiques. Les électrons qui sondent ces grains sont donc insensibles aux fluctuations temporelles de l'aimantation.
La figure V.6 rassemble les courbes de transport de l'échantillon avec 2Å de CoFe à différentes températures. En baissant la température, la réduction progressive des fluctuations d'aimantation lorsqu'on s'approche de la température de blocage permet un gain de susceptibilité des grains (chute de résistivité plus rapide) et une augmentation de la résistivité magnétique, comme autour de T_c dans les matériaux ferromagnétiques. La température de blocage correspond donc pour les propriétés de transport à une sorte de « super température de Curie » pour les entités superparamagnétiques.
Il peut sembler étonnant d'observer des modifications de la magnéto-résistance alors que nous avons montré, dans le paragraphe précédent, que la mesure de résistivité était insensible aux fluctuations temporelles des aimantations. Cependant elle est sensible aux fluctuations spatiales. La mesure de résistivité qui intégre le signal pendant 1 seconde est en fait une mesure moyenne des résistivités de tous les électrons qui ont traversé l'échantillon. Au dessus de T_B, chaque électron donne une résistivité instantanée différente associée aux configurations

magnétiques rencontrées lors de son trajet. Sur le temps de mesure, la moyenne des fluctuations spatiales est équivalente dans ce cas à la moyenne des fluctuations temporelles. Lorsqu'on applique un champ magnétique cela revient donc à dire que la réduction des fluctuations d'aimantation permet une moindre diffusion des électrons de conductions et un allongement du lpm. Au dessous de T_B, chaque électron sonde une configuration magnétique équivalente figée, la magnéto-résistance que l'on mesure est donc comparable à l'effet de GMR.

Compte tenu des distributions de taille des grains, donc de températures de blocage, on observe un passage continu entre les deux types de transport, ce qui ne permet pas de les différencier facilement.

Remarque: Il est possible malgré tout d'observer le passage de T_B en transport par l'**apparition d'irréversibilités** au dessous de cette température. Ainsi on note une hystérésis qui atteint 400Oe, pour la courbe à 4K, alors qu'elle était quasiment nulle pour toutes les autres températures.

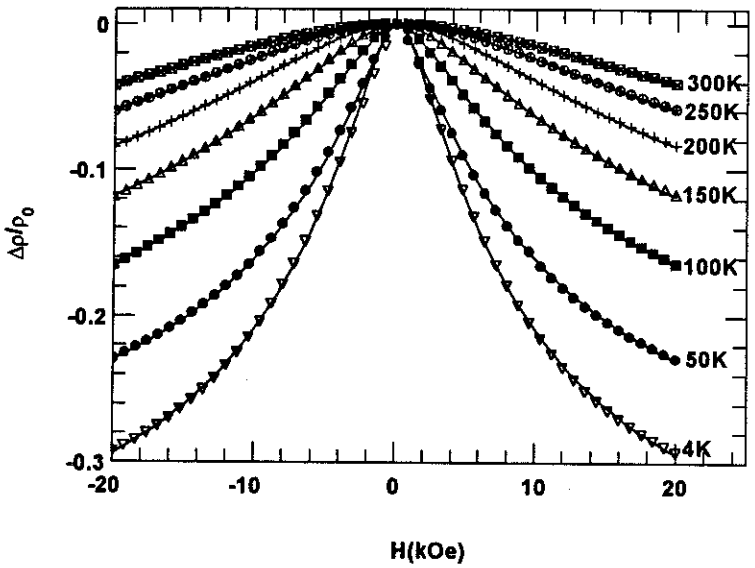


Figure V.6: Courbes de transport à températures variables pour un échantillon avec 2Å de CoFe. Les courbes continues sont des ajustements décrits dans le texte.

Nous avons voulu ajuster les courbes de transport en tenant compte du comportement magnétique des grains et de la microstructure. Pour cela nous avons choisi une distribution réaliste de taille de grains, qui sera discutée dans les prochains chapitres dédiés aux systèmes granulaires, et une fonction de Langevin pour représenter le comportement magnétique. Les courbes continues de la figure V.6 sont le résultats des ajustements. Les bons résultats obtenus montrent que la seule prise en compte de ces deux paramètres est suffisante. Ce simple modèle nous permet aussi d'apprécier le diamètre moyen des grains, que nous estimons à 36Å pour une forme de disque de 1.8Å d'épaisseur.

III. LES TRAITEMENTS THERMIQUES STABILISENT LA STRUCTURE GRANULAIRE.

La principale caractéristique des séries avec t_{CoFe}<6Å est l'apparition de la contribution superparamagnétique qui nuit aux propriétés de transport. Par un traitement thermique on peut espérer augmenter la taille des grains et éliminer cette contribution.

La série avec 3Å de CoFe présente une évolution en deux étapes en fonction de la température de recuit (fig V.7). Entre 300 et 500K l'amplitude de GMR ne change pas, par contre la forme de la courbe évolue vers un régime unique de système granulaire. Les zones continues semblent donc être les premières à souffrir du traitement thermique. A 500K, on peut déjà analyser la courbe par le modèle de distribution de grains superparamagnétiques, on détermine par l'ajustement un diamètre moyen de 35Å, en supposant une forme sphérique des grains. En effet le recuit va homogénéiser les formes de grains en les faisant plutôt évoluer vers ce type de forme.

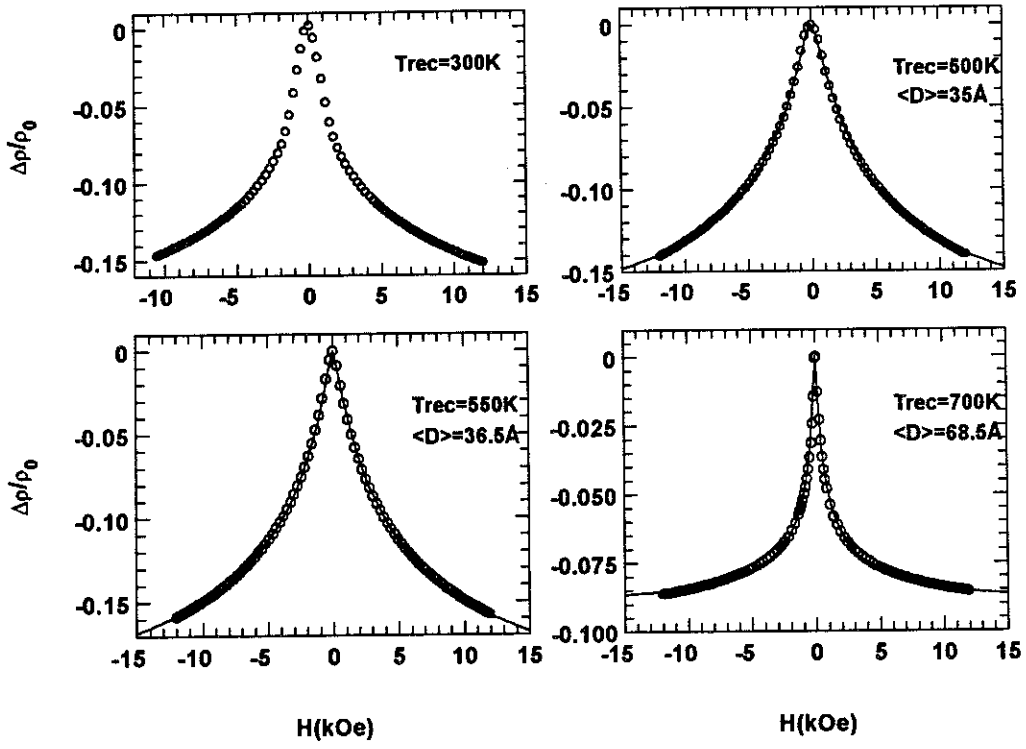


Figure V.7: Evolution des courbes de transport à 300K de l'échantillon [Ag(12.4Å)/CoFe(3Å)] pour différentes température de recuit entre 300 et 700K.

A 550K cette étape de « granularisation » est terminée, on peut alors représenter la couche comme une sorte de multicouche d'Ag et de sphères magnétiques. L'amplitude de GMR dans cette configuration est optimale avec près de 16% et les champs de saturation commencent à décroître.

A 700K les grains sont beaucoup plus gros (∅68.5Å) mais moins nombreux. La GMR est donc plus faible (9.5%) mais les champs de saturation ont aussi fortement diminué. La sensibilité initiale entre les recuits à 300 et 700K a augmenté de **0.045%/Oe** à **0.075%/Oe**.

Pour la série avec 2Å de CoFe, l'évolution est identique avec un diamètre moyen des grains qui passe de 14.9Å à 28.5Å (fig V.8). L'optimum de l'amplitude de GMR est atteint pour un recuit à 650K.

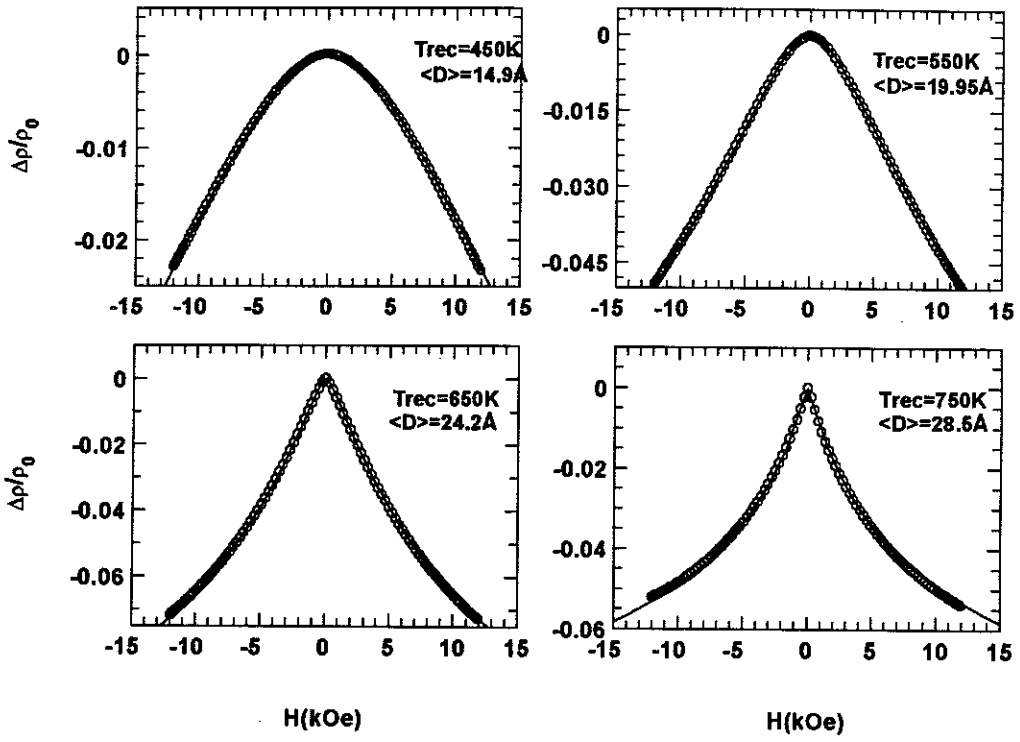


Figure V.8: Evolution des caractéristiques de transport à 300K pour un échantillon avec 2Å de CoFe pour des température de recuit entre 450 et 750K.

Le suivi lors de recuits des caractéristiques structurales des séries Ag/Co par van Alphen et de Jonge est tout à fait en accord avec nos observations puisqu'ils interprètent les modifications de leurs spectres de RMN par une évolution de la forme et de la taille des grains vers une structure plus sphérique et de plus grande taille. Pour leurs couches continues, ils ont aussi observé l'effet de « granularisation ».

CONCLUSION

L'étude de cette série à faible épaisseur d'Ag n'a pas comblé toutes nos espérances au niveau des sensibilités, puisque nous sommes loin des valeurs de Hylton, mais elle nous permet de faire la transition avec les systèmes granulaires proprement dits.
Notons toutefois qu'un système « hybride » constitué de couches continues de FeNi (40Å), de couches discontinues de Co (4Å), et de couches d'Ag pour séparer les couches magnétiques a atteint la sensibilité record de 6.5%/Oe à 4.2K[3]. Malheureusement à 300K le comportement superparamagnétique des grains de Co nuit à nouveau aux performances.

BIBLIOGRAPHIE

[1] E.A.M.van Alphen, W.J.M.de Jonge, Phys.Rev.B, **51**, (1995), 8182
[2] R.Loloee, P.A.Schroeder, W.P.Pratt Jr., J.Brass, A.Fert, Physica B, **204**, (1995), 274
[3] P.Holody, L.B.Steren, R.Morel, A.Fert, R.Loloee, P.A.Schroeder, Phys.Rev.B, **50**, 12999

CHAPITRE VI

CARACTERISATIONS STRUCTURALES ET MAGNETIQUES D'ALLIAGES HETEROGENES $Ag_{(1-x)}FeNi_x$ ET $Ag_{(1-x)}FeCo_x$

INTRODUCTION.....143

I. CARACTERISATION STRUCTURALE DES ALLIAGES.....143
- I.A. Elaboration et analyse chimique.....143
- I.B. Observation par Microscopie Electronique en Transmission.....144
- I.C. Diffraction de RX aux grands angles.....147

II. CARACTERISATION MAGNETIQUE DES ALLIAGES.....150
- II.A. Mesures d'aimantation.....150
- II.B. Résonance ferromagnétique.....156
- II.C. Spectroscopie Mössbauer.....162

CONCLUSION.....166

INTRODUCTION

La réduction de l'épaisseur des couches magnétiques était une méthode peu usuelle mais surtout peu pratique pour élaborer des systèmes granulaires. La co-pulvérisation de deux matériaux immiscibles en est une autre, bien plus rapide et qui permet d'étudier une grande diversité de comportements selon la concentration en élément magnétique.

Depuis 1992, date de la première observation d'une forte magnéto-résistance dans l'alliage granulaire Co-Cu,[1] de nombreux systèmes ont été élaborés, principalement pour leurs propriétés de transport, qui semblaient prometteuses. Malheureusement dans la majorité des cas, la présence de petits grains superparamagnétiques augmentent considérablement le champ de saturation, nuisant ainsi à la sensibilité des systèmes.

Dans ce chapitre nous analyserons les propriétés structurales et magnétiques d'alliages hétérogènes co-pulvérisés de FeNi et d'Ag ou de FeCo et d'Ag; le choix de ces deux alliages étant bien entendu motivé par les bonnes caractéristiques des systèmes multicouches équivalents et par leur immiscibilité. Nous évaluerons l'influence de la concentration et des paramètres de dépôt en termes structuraux, ce qui nous permettra une analyse cohérente des propriétés de transport dans le chapitre suivant.

I. CARACTERISATION STRUCTURALE DES ALLIAGES.

I.A. Elaboration et analyse chimique.

Les échantillons sont préparés dans le même bâti que pour les multicouches (cf Ch.II) mais en alimentant les deux cibles simultanément pour obtenir une co-pulvérisation des matériaux. La pression d'Ar lors du dépôt est de l'ordre de 6.10^{-4} mbar. Les dépôts sont effectués sur deux types de substrats (verre ou silicium oxydé) à température ambiante ou à la température de l'azote liquide.

La concentration moyenne des deux éléments est définie par les tensions appliquées sous chaque cible, mais compte tenu de la géométrie particulière de l'ensemble cible-substrat, les flux de matière sont très inhomogènes au niveau des substrats, ce qui provoque un fort gradient de concentration autour de cette valeur moyenne (±10%). Le disque porte substrat lorsqu'il est maintenu immobile permet ainsi d'obtenir des séries d'échantillons avec un gradient de concentration continu; si au contraire on le met en rotation, on élimine le gradient et on dépose une plaque de concentration homogène.

Le gradient étant surtout sensible selon l'axe joignant les deux cibles, les substrats sont découpés sous forme de lamelles de 25mm×3mm, afin de maintenir le gradient inférieur à 1% dans les échantillons et donc pouvoir définir pour chacun une concentration que nous supposerons homogène. Les épaisseurs globales des couches varient entre 1 et 10µm, selon l'utilisation choisie. Les plus épaisses se décollent naturellement lors du réchauffement après

dépôt (à cause de la différence de dilatation thermique entre la couche métallique et le substrat), ce qui les rend utilisables pour les mesures de Mössbauer par exemple.

Cette technique de co-pulvérisation, de loin la plus souple, présente un défaut majeur: elle induit de larges distributions de tailles de particules, qui peuvent varier de quelques dizaines à quelques milliers d'atomes. La présence des plus petits grains est néfaste aux propriétés de transport à cause de leur caractère superparamagnétique. Bien sûr il est possible d'y remèdier en augmentant la concentration, mais on dépasse alors très vite la concentration critique de percolation où les grains deviennent couplés ferromagnétiquement. Deux solutions sont envisageables pour éviter ce couplage direct: un dépôt à haute température qui augmente la mobilité atomique et provoque des réarrangements lors du dépôt ou des traitements thermiques après dépôt. Ces deux solutions ne se sont malheureusement pas avérées très efficaces car il restait toujours une contribution superparamagnétique.

D'autres méthodes d'élaboration ont été envisagées pour remèdier à ce problème: Les dépots sous ultra vide et à 300K semblaient à première vue améliorer la situation; mais la comparaison avec les résultats des systèmes co-pulvérisés a montré que les comportements étaient tout à fait semblables à ceux obtenus après un traitement thermique[2].

Une équipe de l'université Claude Bernard à Lyon a mis au point une nouvelle technique très intéressante, appelée LECBD (Low Energy Cluster Beam Deposition), qui permet le dépôt de particules de taille très bien définie; puisque la largeur de la distribution n'excéde pas 10Å![3] En éliminant les plus petites tailles, il leur suffira d'ajuster la concentration pour optimiser les propriétés de transport...

Mais revenons à nos couches co-pulvérisées, principal sujet de ce chapitre! L'analyse de la concentration chimique est obtenue par microanalyse X dans un Microscope Electronique à Balayage JEOL-JSM-840A. On vérifie que la stoechiométrie des cibles d'alliage magnétique $Fe_{20}Ni_{80}$ et $Fe_{30}Co_{70}$ est bien conservée dans les couches, et on détermine la concentration atomique en éléments magnétiques. Pour les séries qui nous concernent les concentrations varient respectivement entre 15 et 50%at et entre 27 et 47%at pour les alliages $(FeNi)_xAg_{(1-x)}$ et $(FeCo)_xAg_{(1-x)}$.

I.B. Observation par Microscopie Electronique en Transmission (MET).

Toutes les observations que nous présentons ont été obtenues par **Jean Luc Rouvière** du CENG sur un MET JEOL 400kV. La microscopie électronique permet d'accéder à la structure cristalline locale jusqu'à l'échelle de la maille (microscopie haute résolution). Il existe deux modes d'observation: le mode diffraction où l'on observe le spectre de diffraction d'un objet au niveau du plan focal de l'objectif et le mode image qui donne une représentation physique de l'objet dans le plan image. Compte tenu des fortes interactions électrons-matière, l'objet observé doit se présenter sous la forme d'une lame mince (≅500Å) dans la direction du

faisceau incident. Pour des observations en coupe transverse, telles que celles que nous allons présenter, les échantillons doivent donc subir une préparation préalable. Deux morceaux sont collés face contre face et polis mécaniquement perpendiculairement aux plans des couches pour affiner le film à 20µm. Ils sont ensuite collés sur un support en cuivre et subissent un bombardement ionique jusqu'à percer la lame. L'observation se fait sur les bords du trou de la lame.
La figure VI.1 présente une image en coupe transverse haute résolution d'un l'alliage $FeNi_{15}Ag_{85}$ préparé à 300K.

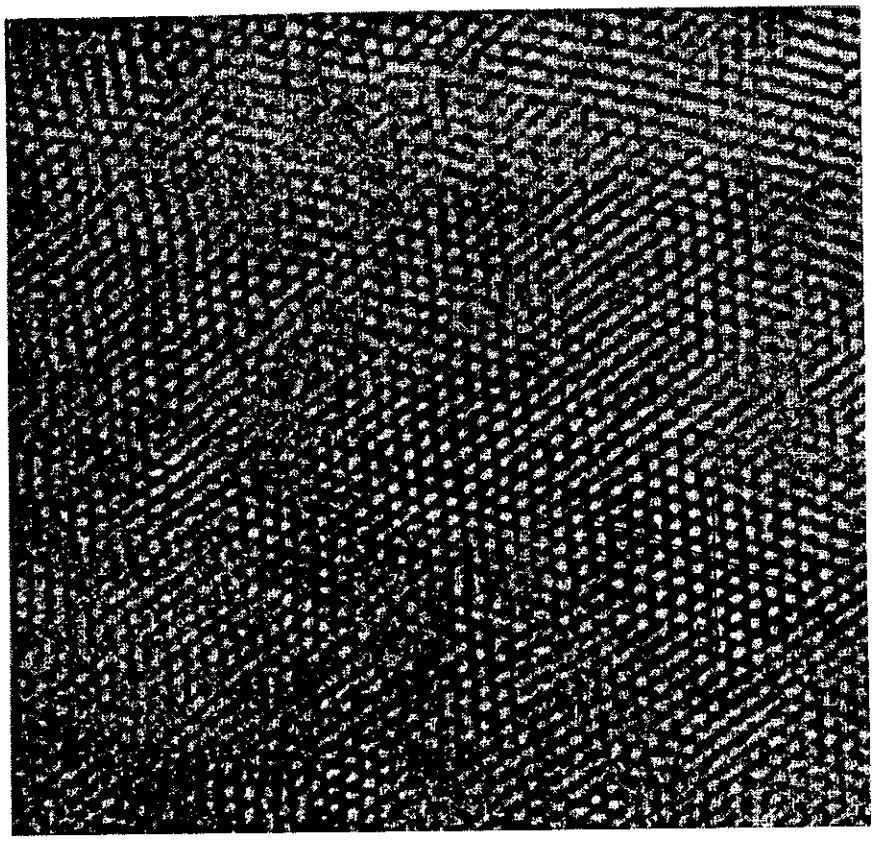


Figure VI.1: Image haute résolution d'un alliage $Ag_{85}FeNi_{15}$. La direction verticale correspond à la direction de croissance <111>. L'échelle de l'image est de 10Å par centimètre.

On constate d'emblée la puissance de ce type d'instrument qui permet de distinguer clairement deux phases: La première brillante, à forts contrastes, où les rangées d'atomes sont bien visibles est associée aux particules d'Ag; la seconde d'aspect plus brouillé et de structure plutôt ramifiée correspond elle aux précipités de FeNi. Cette apparence trouble révèle en fait un mélange intime d'atomes d'Ag et de FeNi dans cette phase. L'image la plus réaliste est celle d'un coeur de FeNi pur et d'une enveloppe de plus en plus concentrée en Ag lorsqu'on s'éloigne du centre. Une analyse détaillée de l'image montre une croissance de type cfc <111> pour les grains d'Ag (présence d'hexagones centrés), ainsi qu'une intégration cohérente des particules de FeNi dans la matrice, les relaxations du réseau apparaissant via des dislocations

autour des grains. A plus grande échelle, les images montrent une structure polycristalline avec des cristallites de l'ordre de 150Å.

La figure VI.2 regroupe deux images de MET en champ sombre à plus faible résolution pour un alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ préparé à 300K. L'image du haut a été obtenue en sélectionnant sur l'image de diffraction la tache correspondant à tous les grains, magnétiques ou non, ayant une texture de type <111>. Les taches blanches correspondent aux grains sélectionnés, on observe une structure granulaire avec des particules de très petite taille (<10Å) réparties de façon homogène dans la couche.

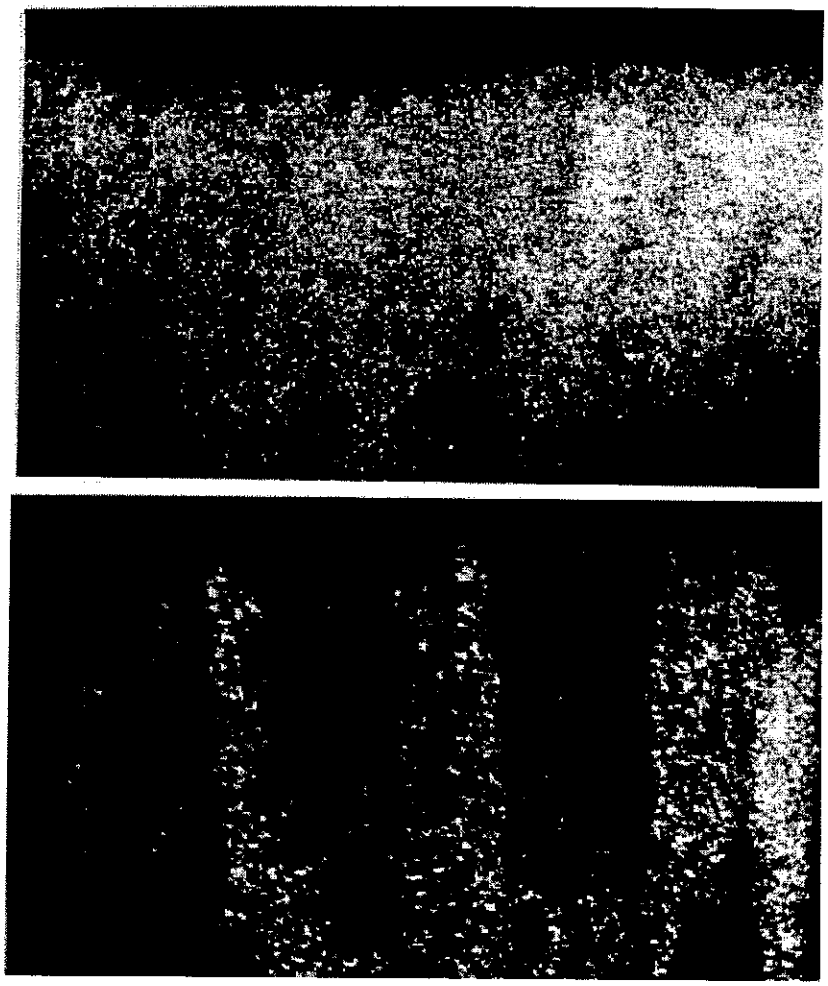


Figure VI.2: Observation MET en champ sombre d'un alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ préparé à 300K. L'image du haut rassemble tous les grains Ag ou FeCo ayant une texture <111> et celle du bas seulement une famille de grains texturés <111> vue selon une direction <011> particulière. L'échelle des images est de 500Å pour 12mm.

L'image du bas est le résultat de la sélection d'une famille de grains texturé <111> en observant selon une direction <011> particulière. En effet le spectre de diffraction présentait deux taches dans cette direction d'observation associées à deux familles de grains d'axe <111> légérement désorientés; en éliminant par un diaphragme une des deux taches, on limite l'observation à une seule famille. Cette seconde image fait alors apparaître une structure à plus

grande échelle, formée de colonnes verticales dont les dimensions latérales sont assez faibles (100 à 400Å) et qui ne restent pas continues sur toute l'épaisseur de couche. A cette échelle nous ne pouvons avoir de renseignements sur la cohérence entre particules de FeCo et d'Ag, mais elle doit être sensiblement la même que pour l'alliage précédent.

I.C. Diffraction de RX aux grands angles.

Les études en microscopie ont été complétées par des mesures de diffraction de rayons X classiques en θ-2θ aux grands angles. La figure VI.3 rapporte quelques spectres d'alliages de $FeNi_xAg_{(1-x)}$ pour des concentrations et des températures de dépôt différentes.

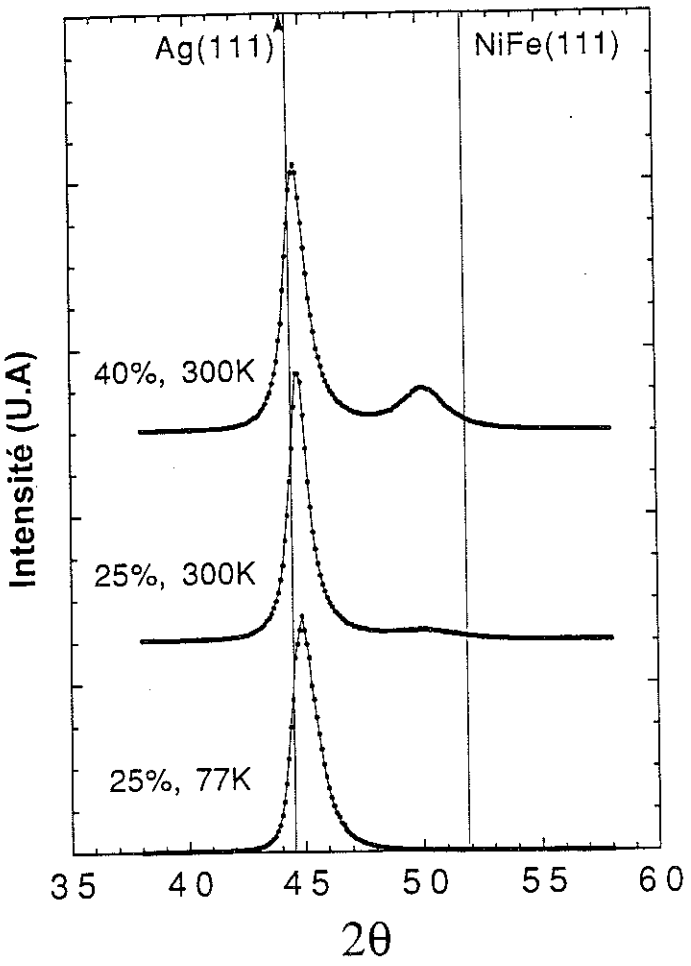


Figure VI.3: Spectres de diffraction X aux grands angles pour des alliages $FeNi_xAg_{(1-x)}$ à diverses concentrations et pour des températures de dépôt différentes. Les lignes veticales correspondent à l'Ag et au FeNi à l'état massif.

Sur ces spectres seules les réflections de type (111) sont observées pour des angles entre 40 et 120°, ce qui indique la forte texture des grains. La raie (111) du FeNi est surtout

visible pour l'échantillon déposé à 300K avec 40%at de FeNi. Pour des concentrations inférieures ou des température de dépôt plus basses, les grains de FeNi sont beaucoup plus petits et finement dispersés dans la matrice; l'intensité de la raie est donc fortement atténuée voire nulle.

On constate d'autre part un décalage prononcé (surtout pour les pics (111) du FeNi) des positions angulaires des pics par rapport à celles du massif, qui sont données par les lignes verticales. Ce phénomène peut s'interpréter soit par un effet d'alliage AgFeNi soit par la présence de contraintes aux interfaces cohérents des grains d'Ag et de FeNi.[4] En privilégiant l'hypothèse de l'alliage, ces décalages correspondraient à une dilution moyenne de 2% de FeNi dans l'Ag et entre 23 et 40% d'Ag dans le FeNi selon sa concentration (25 ou 40%at).

La largeur des raies s'interpréte quant à elle en termes de qualité cristalline, de distribution de tailles de particules, de contraintes non uniformes ou de distribution de concentration d'alliage. En admettant que seule la distribution de taille influe, la formule de Scherrer, qui relie la largeur de raie à la taille des particules, permet d'estimer que la taille moyenne varie entre 20Å ($FeNi_{25}Ag_{75}$) et 40Å ($FeNi_{40}Ag_{60}$).

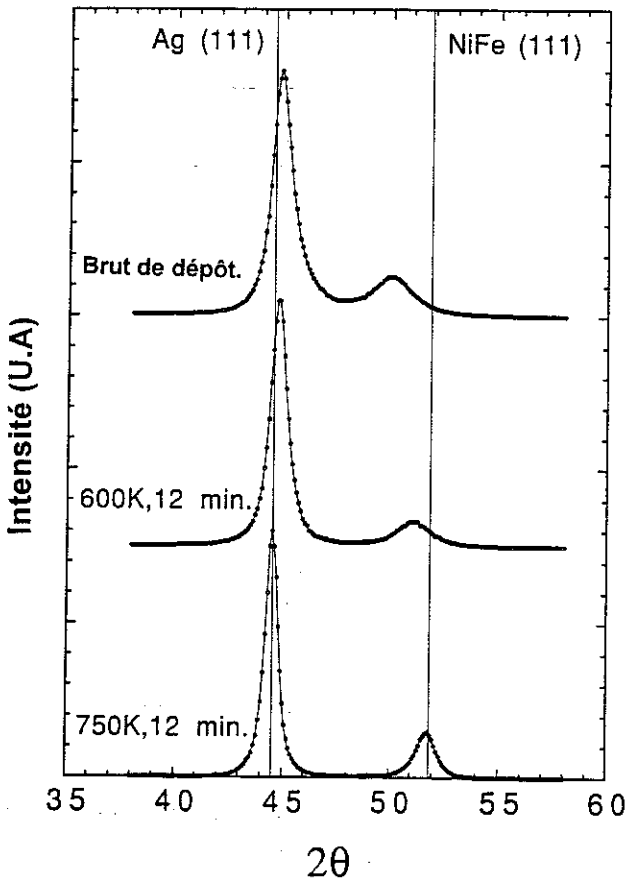


Figure VI.4: Spectres de diffraction de l'alliage $Ag_{60}FeNi_{40}$ pour trois températures de recuit. Les recuits sont effectués sous un vide de 10^{-5} Torr pendant 12 min.

Lors des traitements thermiques les échantillons évoluent considérablement comme le montrent les spectres de la figure VI.4. Les pics de FeNi et d'Ag se déplacent vers les positions du matériau massif, ce qui indique une démixtion progressive des deux éléments. Parallèlement les tailles de particules augmentent puisque les raies s'affinent et que leur intensité augmente. Quantitativement on peut estimer que la taille moyenne des particules de FeNi passe de 40Å (après dépôt) à 95Å après recuit à 750K. Les grains d'Ag grossissent pour leur part de 95 à 150Å au cours du recuit. Cette démixtion et ce grossissement des grains caractérise une individualisation des précipités et une meilleure qualité structurale, qui ne seront pas négligeables au niveau des propriétés de transport.

Remarque: Des traitements thermiques de longue durée (160h) ne montrent pas davantage d'évolution, ce qui prouve le caractère très métastable des échantillons bruts[5] qui se réorganisent très rapidement.

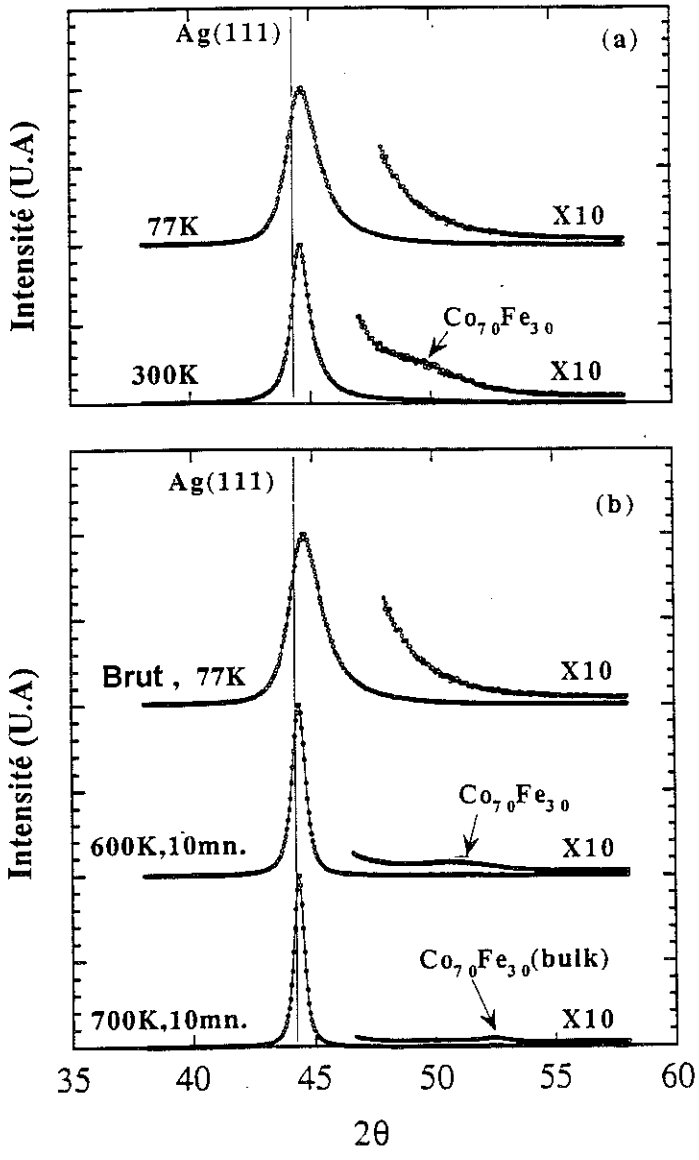


Figure VI.5: Spectres de diffraction X de l'alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ à différentes températures de dépôt et pour différents traitements thermiques.

Les alliages $Ag_{(1-x)}FeCo_x$ présentent des spectres en tous points similaires (fig VI.5) avec une démixtion des deux éléments et une augmentation de la taille des grains lors des traitements thermiques. La seule différence notable par rapport au système précédent vient de la taille moyenne des grains de CoFe qui est nettement plus faible que ceux de FeNi pour des concentrations pourtant équivalentes. En effet pour l'alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ présenté la taille moyenne des grains de FeCo est inférieure à 10Å après dépôt à 300K (contre 40Å pour $Ag_{60}FeNi_{40}$) et n'évolue que jusqu'à 70Å (contre 95Å) après recuit à 700K. Il semble que lors du dépôt, on assiste à la formation d'une solution solide AgFeCo très instable où les atomes de FeCo sont très intimement et très finement mélangés avec l'Ag. L'immiscibilité de ces deux composants est donc bien inférieure au système précédent...

Une image de MET permet de vérifier l'évolution de la structure granulaire du FeCo après recuit à 700K. En sélectionnant uniquement la tache de diffraction correspondant aux grains de FeCo <111>, on obtient l'image en champ sombre de la figure VI.6. On voit que contrairement à la première image de la fig VI.2, où les grains étaientt vraiment très fins, ils présentent ici une structure plus compacte, bien définie et des formes plutôt sphériques. Cependant la distribution de taille reste très large entre 10 et 100Å!

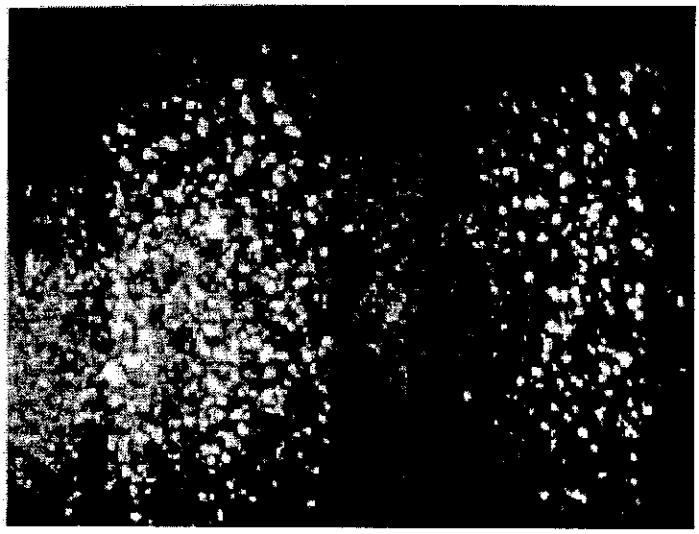


Figure VI.6: Image MET en champs sombre des précipités de CoFe d'un alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ après traitement thermique à 700K.

II. CARACTERISATION MAGNETIQUE DES ALLIAGES.

II.A. Mesures d'aimantation.

♦ Alliages de FeNi.

Le comportement **superparamagnétique** et l'existence d'une **température moyenne de blocage** étant les deux principaux critères des systèmes granulaires, nous avons suivi leurs

évolutions en fonction de la concentration en élément magnétique et du traitement thermique, grâce à des mesures d'aimantation. L'étude des caractéristiques M(T) après refroidissement sans champ (ZFC) ou sous champ (FC) est en effet très révélatrice des températures de transition entre les différents états magnétiques. La figure VI.7 illustre cette sensibilité pour trois concentrations en FeNi de 15, 22 et 30%at.

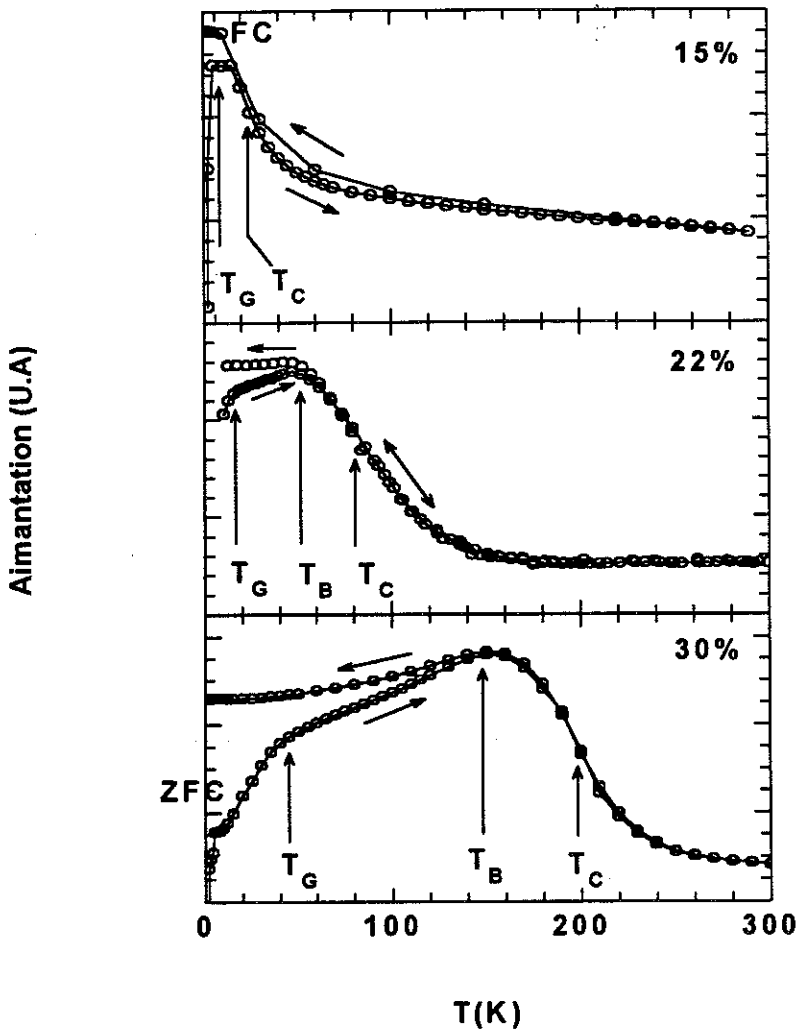


Figure VI.7: Courbes M(T) pour trois alliages de $Ag_{(1-x)}FeNi_x$ avec x=0.15,0.22,0.3. Les mesures sont effectuées dans un champ de 40Oe après refroidissement en champ nul (ZFC) ou sous champ (FC). Les annotations T_C, T_B, T_G font référence respectivement aux température de Curie de la phase superparamagnétique, de Blocage des particules en interactions et de Gel des particules soumises à leur anisotropie propre.

L'échantillon avec 15%at conserve un comportement superparamagnétique (caractérisé par la réversibilité de l'aimantation) jusqu'à très basse température ($T_C \cong 22K$), car les grains sont de très petites tailles et très dispersés au sein de la matrice. Compte tenu de la distribution de taille, on ne peut définir qu'une valeur moyenne de T_C qui correspondra à un gain de 50% de l'aimantation. Au dessous de 10K, la forte dépendance thermique de l'anisotropie provoque un

gel de l'aimantation des grains dans des directions aléatoires définies par l'anisotropie propre de chaque grain (anisotropie de forme, de surface ou magnétocristalline). cette **configuration à anisotropie aléatoire** est caractérisée par l'apparition d'une forte irréversibilité et d'une aimantation thermorémanente. Au niveau de l'aimantation la température de gel T_G est définie par la rupture de pente de la mesure ZFC.

En augmentant la concentration on constate un déplacement de T_C vers les hautes températures (80K pour 22%at et 200K pour 30%at), qui reflète le grossissement de la taille moyenne des grains mais surtout un renforcement des interactions entre grains du fait de la diminution de la distance inter-grains. Mais le point le plus important pour cette gamme de concentration est l'apparition d'une température moyenne de blocage T_B définie au point de jonction des courbes ZFC et FC. Ce blocage des aimantations des grains ferromagnétiques est caractéristique d'**entités en interactions**: en effet au dessous de T_C, les grains développent des interactions à longue portée, dont la nature est à définir (couplages dipolaires et/ou de type RKKY), qui peuvent être contradictoires au niveau de chaque grain du fait de la distribution des distances. Les aimantations des grains vont ainsi se bloquer dans une direction qui minimise l'ensemble des interactions et qui peut être variable d'un grain à un autre. Cet état est assez similaire au gel mais présente une irréversibilité moins marquée comme l'indique l'aire entre les mesures ZFC et FC. Cette dernière nous renseigne aussi sur la nature des interactions entre particules; plus elles seront aléatoires plus l'irréversibilité sera importante. Dans nos échantillon il semble donc que les interactions sont majoritairement ferromagnétiques. Enfin dernière remarque sur T_B; elle est toujours proche de T_C (contrairement à T_G) à cause de son lien direct avec les interactions, sauf dans le cas d'alliages concentrés où T_B disparait car au delà du seuil de percolation les interactions sont majoritairement ferromagnétiques (échange direct), il n'y a donc plus de compétition. Lorsqu'on baisse encore la température l'anisotropie des grains provoque comme aux plus faibles concentrations un gel du système. l'augmentation de T_G avec la concentration trouve sûrement son origine dans le renforcement de l'anisotropie de forme des grains de grande taille.

La figure suivante montre un exemple de courbe M(H) pour un échantillon faiblement concentré (15%at). On retrouve tous les critères d'un comportement superparamagnétique classique: aimantation nulle en champ nul, forte dépendance thermique de l'aimantation et difficulté pour saturer l'échantillon même dans 20kOe et à 30K du fait des atomes paramagnétiques isolés. Nous avons essayé d'ajuster ce comportement à l'aide d'une fonction de Langevin (courbes en pointillés), mais sans grand succés car elle ne prend en compte qu'une seule taille de grain. Par contre une distribution de fonctions de Langevin associée à une distribution de tailles de particules est bien plus satisfaisante (courbes continues). Le choix de la forme de la distribution sera discutée ultérieurement, mais elle permet de définir un diamètre moyen des particules de 15Å, réaliste pour cette concentration en FeNi.

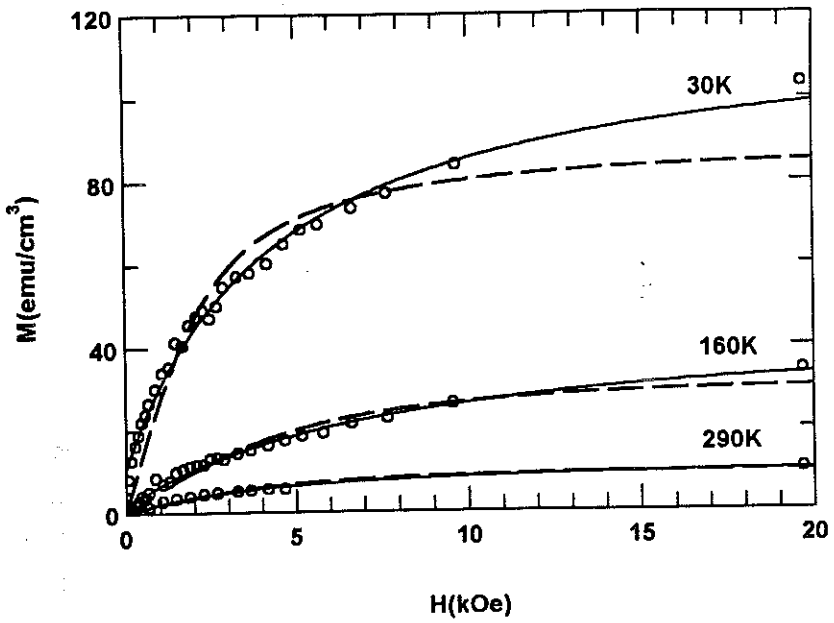


Figure VI.8: Courbes M(H) à différentes températures pour un alliage $Ag_{85}FeNi_{15}$. Les courbes en pointillés sont le résultat d'un ajustement par une fonction de Langevin et les courbes continues par une distribution de fonctions de Langevin associée à une distribution de volumes de particules.

Au cours des traitements thermiques on observe une évolution cohérente des courbes d'aimantation pour l'échantillon avec 30%at de FeNi (cf figure VI.9). La ségrégation du FeNi et de l'Ag ainsi que le grossissement des grains explique l'évolution rapide de T_C qui devient largement supérieure à 300K après un recuit à 750K pendant 12 min. L'aimantation FC montre seulement une lente décroissance thermique, preuve d'un comportement bien ferromagnétique des grains. Au niveau des interactions, la légére augmentation de l'irréversibilité au dessous de T_B après le recuit à 600K, montre un affaiblissement des interactions ferromagnétiques, qui s'explique par l'éloignement progressif des grains.
Toute trace de superparamagnétisme ayant pratiquement disparu, on peut espérer de meilleures propriétés de transport avec des champs de saturation mieux définis et une moindre diffusion. La température de blocage suit une variation identique à T_C, atteignant 300K pour le plus fort recuit. Cette forte valeur de T_B sera aussi appréciable pour les mesures de transport car elle définit le seuil d'apparition d'une magnétorésistance de type GMR, comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent. Enfin la température de Gel doit une fois de plus évoluer en fonction de l'anisotropie propre des grains de permalloy. On aurait pu s'attendre à une réduction de T_G avec la purification du FeNi (puisque K1#0) mais l'anisotropie de forme des grains si elle existe peut contrecarrer la diminution de l'anisotropie magnétocristalline et provoquer l'accroissement observé de T_G.

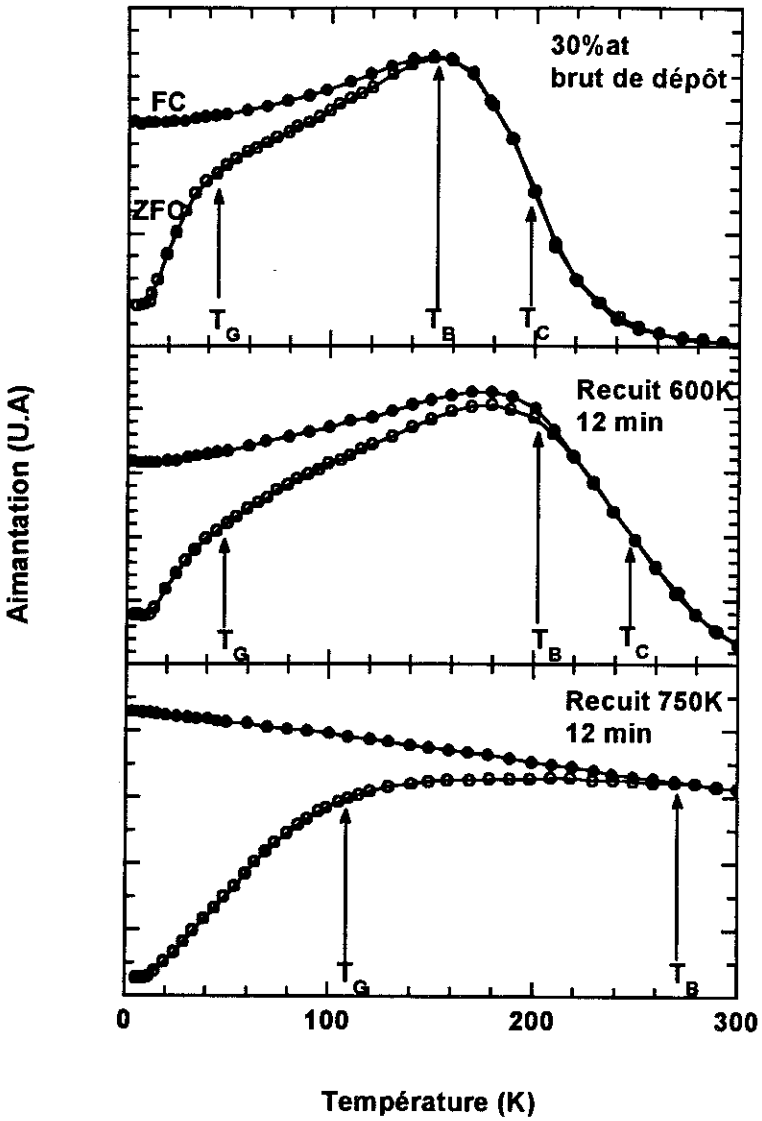


Figure VI.9: Courbes M(T) d'un alliage $Ag_{70}FeNi_{30}$ pour différents traitements thermiques.

♦ Alliages de FeCo

Les alliages à base de FeCo suivent des évolutions tout à fait similaires sauf pour les échantillons bruts de dépôt. Pour l'alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ présenté sur la figure VI.10, on constate en effet que l'échantillon brut de dépôt posséde une aimantation rémanente importante dès la température ambiante (1/5 de M_{sat}) qui augmente fortement en baissant la température pour atteindre 3/5 de M_{sat} à 10K. Ce comportement s'explique par le mélange très intime des atomes de FeCo et d'Ag qui forment une matrice AgFeCo magnétique. Les précipités de FeCo individualisés sont donc en interactions directes via cette matrice magnétique. En baissant la température l'aimantation de ces particules se renforce d'où le fort rémanent à 10K. Les plus petites particules restent pour leur part superparamagnétiques et contribuent aux queues d'aimantation difficiles à saturer, et à la forte dépendance thermique. La courbe M(T) en

regard confirme cette explication, puisque le T_C moyen se situe au dessus de 300K (de nombreuses particules ont donc un comportement ferromagnétique) et on n'observe pas de température de blocage, signe que les interactions sont très homogènes (ferromagnétiques) à travers tout l'échantillon. A très basse température les aimantations se « gèlent » à cause des anisotropies des grains (idem que dans les alliages à base de FeNi).

Après un recuit à 700K pendant 10 min, la démixion des grains de FeCo et d'Ag est effective, puisqu'on note la réapparition d'un comportement superparamagnétique jusqu'à environ 150K et la présence d'une température de blocage, qui atteste que la matrice n'est plus magnétique. Cette caractéristique est maintenant tout à fait comparable avec celle de l'alliage $Ag_{70}FeNi_{30}$ à 750K. Après un recuit à 900K, la taille des grains est bien plus forte, la température d'ordre est donc repoussée bien au delà de 300K (quasiment à sa valeur du massif), le blocage intervient dès 300K et les courbes d'aimantation sous champ ne montrent plus de dépendance thermique et une saturation rapide.

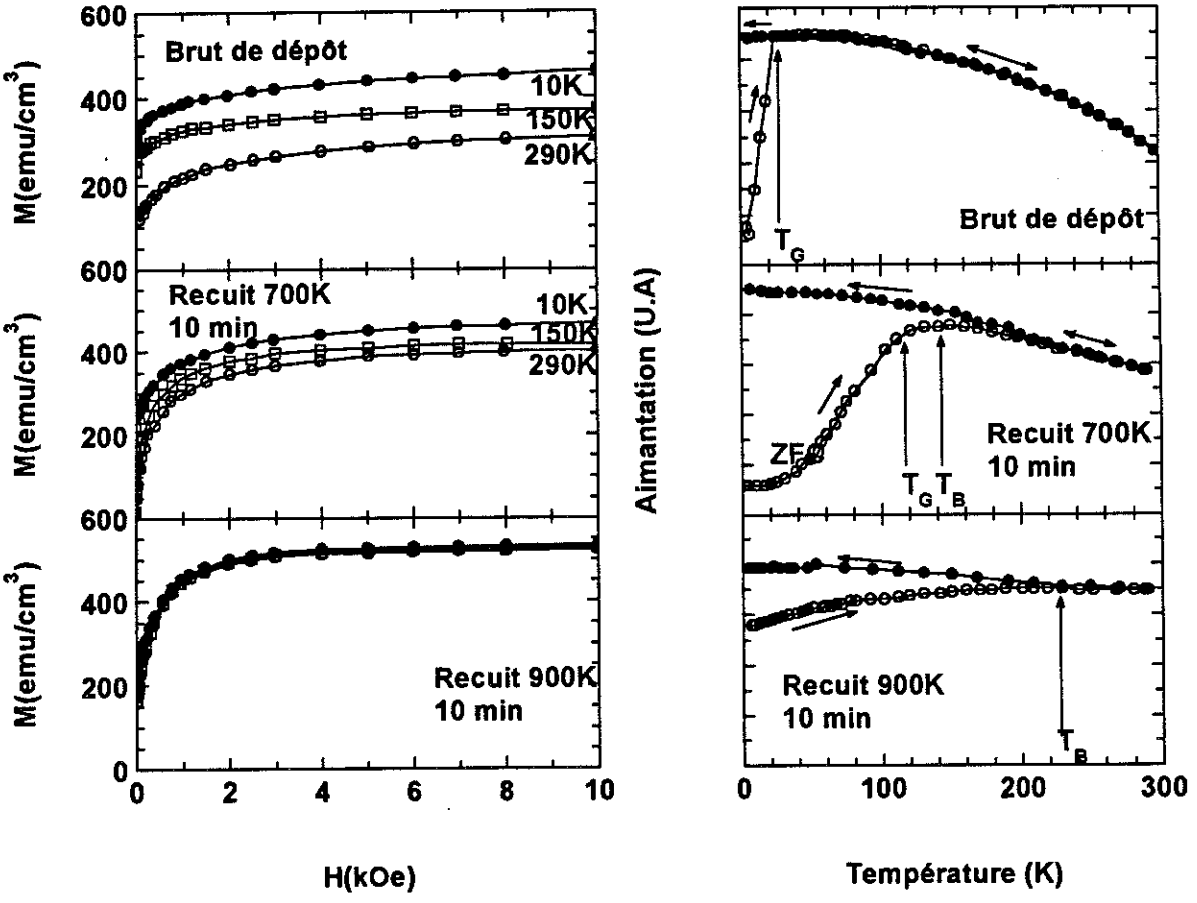


Figure VI.10: Courbes M(H) et M(T) de l'alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ pour différents traitements thermiques.

Résumons l'analyse des comportements magnétiques en faisant le parallèle avec les propriétés structurales:
Les systèmes granulaires se caractèrisent principalement par le **comportement superparamagnétique** des petits grains magnétiques et ce jusqu'à des concentrations relativement élevées de l'ordre de 36%at pour les alliages à base de FeNi ou de FeCo. Cette concentration semble assez universelle dans ces systèmes puisqu'on la retrouve aussi dans les alliages Co-Ag[6] et Co-Cu[7].
Au dessous de la température de blocage T_B, les différentes interactions qui agissent sur chaque grain provoquent un blocage des aimantations dans les grains. Cette configuration de type « **cluster-glass** » est très semblable à celle des multicouches, elle pourrait donc être le seuil d'une MR semblable à l'effet GMR.
La température de Gel où l'anisotropie domine les couplages ne provoque pas de bouleversements des configurations magnétiques; les mesures M(H) ne montrent donc pas de changements notables.

Les traitements thermiques qui augmentent les tailles de grains jouent un rôle un peu équivalent à la concentration: ils permettent de faire monter le T_C et la température de blocage. Cependant une différence importante apparaîtra lors des mesures de transport car les traitements thermiques optimisent une structure à couplages aléatoires alors que les fortes concentrations vont provoquer la domination de couplages ferromagnétiques ou la percolation des grains.

II.B. Résonance ferromagnétique.

La résonance ferromagnétique (FMR) est une technique très sensible, qui est souvent utilisée dans le cas des couches minces pour atteindre les constantes d'anisotropie magnétocristallines intrinséques, de surface ou liées aux contraintes,[8] voire les constantes de couplages si la fréquence peut être ajustée[9].

Une description classique de la FMR peut être donnée à partir du mouvement d'un moment magnétique $\mathbf{m}$ dans un champ statique $\mathbf{H_0}$. Le moment qui a tendance à s'aligner dans la direction du champ statique va subir de la part de ce dernier un couple Γ perpendiculaire au plan (H_0,m): $\Gamma=\mathbf{m}\wedge\mathbf{H_0}$
Le principe fondamental de la dynamique relie ce couple à la variation du moment cinétique $\mathbf{N}=\mathbf{m}/\gamma$; d'où la relation:

$$\frac{\mathbf{dm}}{\mathbf{dt}} = \mathbf{m} \wedge (\gamma \mathbf{H_0}) \qquad (1)$$

Cette équation montre que les variations de **m** sont à tout instant perpendiculaires à **m** et $\mathbf{H_0}$; elle définit donc la précession du moment autour du champ statique à une pulsation $\omega_L=\gamma\mathbf{H_0}$ qui correspond à la pulsation de Larmor. Si on applique un champ magnétique oscillant $\mathbf{H_1(t)}$ haute fréquence qui tourne à une pulsation ω perpendiculairement à $\mathbf{H_0}$ ($|\mathbf{H_1}| << |\mathbf{H_0}|$) on observera un phénomène de résonance lorsque les deux pulsations deviendront égales. L'équation (1) en présence de ce champ HF supplémentaire s'écrit alors:

$$\frac{\mathbf{dm}}{\mathbf{dt}} = \mathbf{m} \wedge \gamma\left[\mathbf{H_0} + \mathbf{H_1(t)}\right] \qquad (2)$$

On peut éliminer la composante dépendante du temps en choisissant un nouveau système de coordonnées qui tourne autour de la direction z à la pulsation ω. H_1 devient statique dans ce référentiel tout comme H_0, si bien que l'équation (2) devient:

$$\frac{\mathbf{dm}}{\mathbf{dt}} = \mathbf{m} \wedge \left[(\gamma\mathbf{H_0} - \omega) + \gamma\mathbf{H_1}\right] \qquad (3)$$

La précession s'effectue désormais autour du champ effectif $\mathbf{H_{eff}}=(\mathbf{H_0}-\omega/\gamma)+\mathbf{H_1}$. Le système ainsi décrit, on constate que la résonance peut intervenir soit en ajustant la pulsation du champ HF, soit en conservant une pulsation fixe mais en modifiant l'intensité du champ statique $\mathbf{H_0}$. C'est cette dernière solution plus facile et moins coûteuse qui est appliquée dans les montages de résonance ferromagnétique.

Lors d'une description quantique, on considère que les quantas absorbés ou émis par le système lors de transitions entre niveaux Zeeman sont définis par la relation:

$$\hbar\omega_{ik} = \Delta E_{ik} \qquad (4)$$

où i et k sont deux niveaux d'un multiplet Zeeman. D'autre part la variation d'énergie (ΔE_{ik}) est donnée par la résolution de l'hamitonien Zeeman, on peut ainsi la relier au champ statique $\mathbf{H_0}$ par l'égalité:

$$\omega_{ik} = \frac{g\mu_B}{\hbar}\Delta M_{ik}\mathbf{H_0} \qquad (5)$$

où g est le facteur de Landé et ΔM_{ik} représente la différence des nombres quantiques magnétiques des niveaux i et k. Compte tenu des règles de sélection rigides qui régissent les éléments de matrice, seules les transitions $\Delta M_{ik}=\pm 1$ peuvent avoir lieu. La polarisation des ondes émises lors de ces transitions étant perpendiculaire à $\mathbf{H_0}$, il est nécessaire d'appliquer un

champ HF perpendiculaire pour espèrer l'effet inverse d'absorption. La résonance interviendra lorsque la pulsation ω du champ HF correspondra à la pulsation des quantas ω_{ik}:

$$\omega_{res} = \omega_{ik} = \omega_L = \frac{g\mu_B}{\hbar} H_0 = \gamma H_0 \qquad (6)$$

On rejoint à ce niveau la description classique de la résonance de l'équation (3).

Dans les systèmes granulaires, la résonance est très peu usitée[5,10] pourtant elle s'avère riche en enseignements, comme nous allons le voir. La figure VI.11 rassemble divers spectres de résonance ferromagnétique à 300K obtenus sur un appareil où la fréquence de l'onde HF est maintenue à 9.47GHz (bande X). Les échantillons sont placés à l'extrèmité d'une baguette en plexiglass, (pour éviter des perturbations lors de l'application du champ statique) qui est plongée dans la cavité résonante. L'orientation de l'échantillon par rapport au champ magnétique est contrôlée pour enregistrer des spectres avec des orientations variant entre 0 et 90° par pas de 10°.

En comparant ces spectres on constate d'emblée une forte évolution en fonction de la concentration en FeNi qui varie entre 19%at (haut) et 40%at (bas). Pour l'échantillon le moins concentré les spectres se caractérisent par une **raie à bas champ**, surtout visible autour de l'orientation à 90°. L'évolution angulaire de cette raie dans un échantillon en couches minces correspondrait à une anisotropie perpendiculaire[8]; dans notre cas, il semble qu'il faille plutôt l'associer à une **précession non uniforme des aimantations dans les grains superparamagnétiques**, i.e. une précession non collective due au comportement individualisé des aimantations. A plus fort champ, on détecte une **seconde raie** (à peine visible à l'échelle du graphe) vers 3000 Oe de très faible amplitude et qui ne dépend pas de l'orientation par rapport au champ. Cette raie correspond aux précessions uniformes des plus gros grains déjà ferromagnétiques. La grande dispersion de ces quelques grains ne permet pas d'interactions entre eux, ils se comportent donc comme des **grains sphériques sans interactions**, ce qui explique l'indépendance angulaire.
Pour une concentration un peu supérieure (23%at), ces constatations restent valables avec cependant une légère augmentation de l'amplitude de la raie à fort champ et une très faible dépendance angulaire. A partir de 30%at la raie associée aux précessions non uniformes a quasiment disparu; la contribution superparamagnétique est donc très faible. Si on compare ce résultat avec les mesures d'aimantation on constate un certain écart dans la définition de la température de blocage; toutefois il faut garder en mémoire que c'est le rapport entre temps de fluctuation et temps de mesure qui importe. Dans le cas de la résonance en bande X le temps de mesure est très court, et dès que la période de fluctuation devient plus longue que 10^{-9}s le moment apparait figé. Il est donc tout à fait normal d'observer le blocage à 300K pour une concentration plus faible.

La dépendance angulaire de la raie à fort champ devient plus importante, signe que **des interactions à plus longue portée se développent** et favorisent une direction facile plutôt dans le plan de l'échantillon. Les mesures d'aimantation indiquaient une distribution aléatoire des couplages, mais en fait les couplages ferromagnétiques dominent légérement.

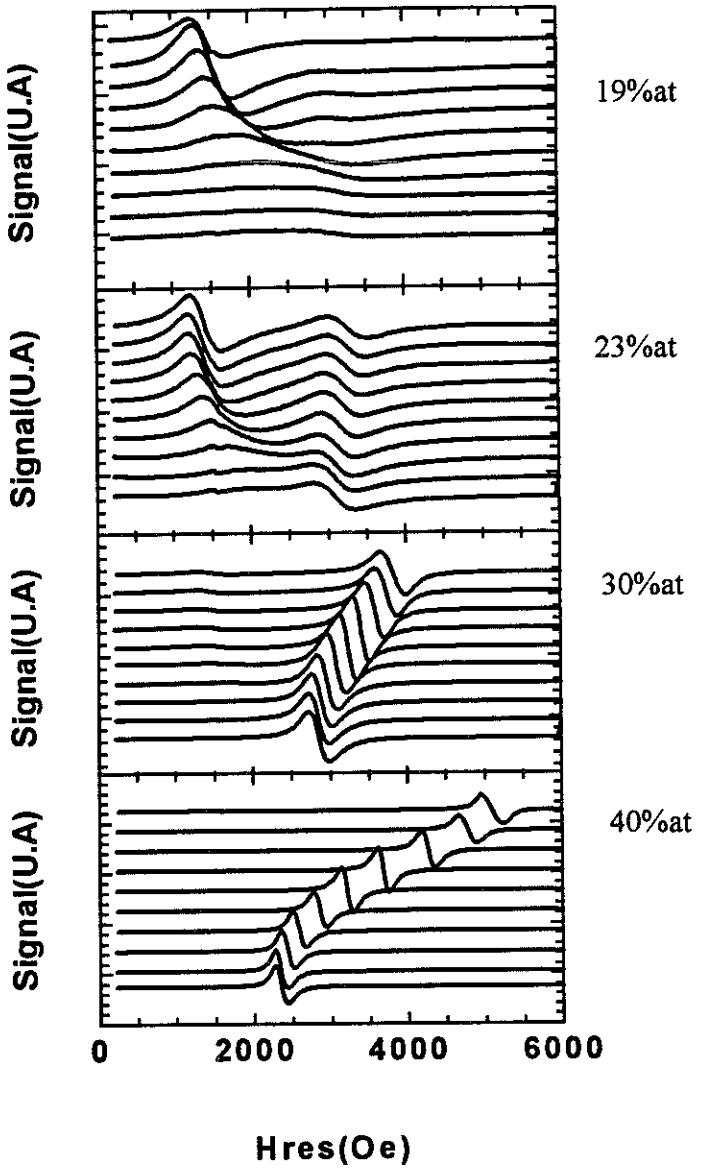


Figure VI.11: Spectres de FMR à 300K sur des alliages $Ag_{(1-x)}FeNi_x$ pour x=19, 23, 30, 40%at de haut en bas. Les spectres sont obtenus pour des orientations de l'échantillon par rapport au champ statique variant entre 0° (ligne du bas) et 90° (ligne du haut) par aps de 10°.

Avec 40%at de FeNi, l'effet est encore plus net avec un fort décalage du champ de résonance entre les configurations 0° et 90°. Les interactions ferromagnétiques dominent de plus en plus, et sont même renforcées pour cet échantillon par la percolation des grains. Le spectre est alors tout à fait comparable à celui d'une couche mince ferromagnétique.

Nous avons reporté sur la figure VI.12 les variations des champs de résonance en fonction de l'orientation de l'échantillon par rapport au champ statique pour les 4 concentrations décrites précédemment.

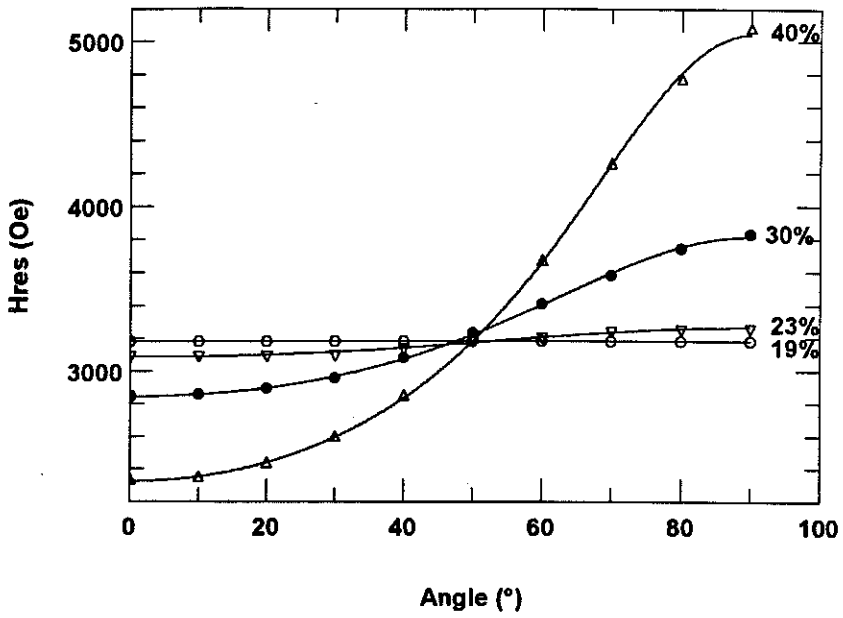


Figure VI.12: Variation de Hres en fonction de l'angle entre H et le plan de l'échantillon, pour 4 concentrations en FeNi.

Ces dépendances angulaires ont été ajustées en modifiant quelque peu la formulation utilisée pour les multicouches. Considérons la géométrie de mesure de la figure suivante:

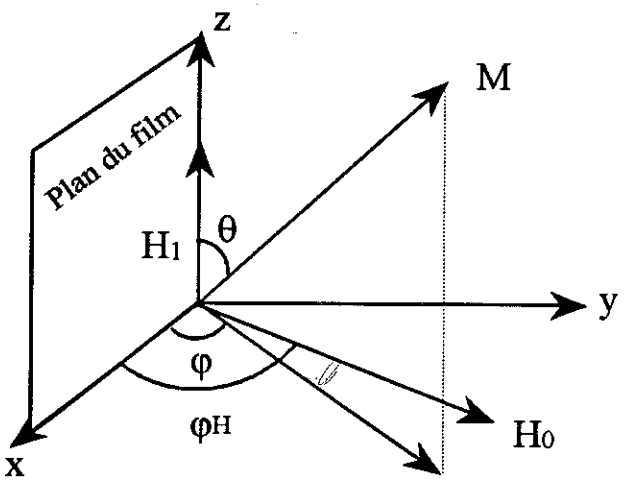


Figure VI.13: Orientation des axes pour la mesure de FMR.

L'équation de Smit et Beljers[11] permet de relier la condition de résonance à l'énergie effective du système:

$$\left[\frac{\omega_{res}}{\gamma}\right]^2 = \frac{1}{M^2 \sin\theta_{eq}}\left\{\frac{\partial^2 E}{\partial\theta^2}\frac{\partial^2 E}{\partial\varphi^2} - \left[\frac{\partial^2 E}{\partial\theta\partial\varphi}\right]^2\right\}_{\theta eq,\varphi eq} \qquad (7)$$

où E est l'énergie effective et M l'aimantation du système à la résonance.

Posons $E_{eff}=E_{zeeman}+E_{démagnétisant}+E_{anisotropie}$ avec:

$Ez= -\mathbf{M}.\mathbf{H} = HM \sin\theta \cos(\varphi_H-\varphi)$

$Ed= 1/2M^2 (Nx \sin^2\theta\cos^2\varphi + Ny \sin^2\theta\sin^2\varphi + Nz \cos^2\theta)$

avec $Nx=Nz=(4\pi-Ny)/2$ (si on considère qu'il n'y a pas d'anisotropie de forme dans le plan des films). Ces coefficients sont liés à la forme des grains par le rapport des axes c/a.

$Ea= -(K_1+2K_2) \sin^2\theta\sin^2\varphi + K_2 \sin^4\theta\sin^4\varphi$

Cette énergie d'anisotropie est de type uniaxiale, ce qui est valable dans le cas de système nanostructuré cfc texturé <111> à cause de l'homogénéisation des directions cristallographiques dans le plan des couches[12]. K_1 représente l'anisotropie magnétocristalline, qui devrait être faible dans nos couches avec l'utilisation du FeNi et K_2 est liée à l'anisotropie d'origine élastique due aux contraintes.

En intégrant ces différentes énergies dans l'équation (7) on peut remonter à l'expression de ω_{res}/γ et de là à l'expression du champ de résonance H_{res}:

$$H_{res} = \frac{(-1/2(4\pi-3Ny)M - Ha)(2\sin^2\varphi_{eq} - \cos^2\varphi_{eq}) - Ha\,2\sin^2\varphi_{eq}(3-5\sin^2\varphi_{eq})}{2\cos(\varphi_H-\varphi_{eq})}$$
$$+\frac{\sqrt{((-1/2(4\pi-3Ny)M - Ha)\cos^2\varphi_{eq} + 3Ha\,2\cos^2\varphi_{eq}\sin^2\varphi_{eq})^2 + 4(\omega/\gamma)^2}}{2\cos(\varphi_H-\varphi_{eq})}$$

Nous avons ensuite fait un petit programme d'ajustement de Hres en fonction de φ_H, qui calcule la position d'équilibre pour chaque valeur de φ_H et ajuste les paramètres pour retrouver le bon champ de résonance. Les courbes continues de la figure VI.12 sont les résultats de ces ajustements. Le tableau ci-dessous rassemble les valeurs des paramètres et leur interprétation.

Conc (%at)	Ha2 (Oe)	ω/γ (Oe)	M (emu/cm^3)	Ny	c/a
19	**0**	**3180**	**194**	**4.18**	**1**
23	**29**	**3136**	**258**	**4.47**	**0.91**
30	**182**	**3098**	**378**	**5.36**	**0.72**
40	**219**	**3076**	**523**	**6.64**	**0.5**

Tableau VI.1: Valeurs des paramètres d'ajustement de la figure VI.12.

Deux remarques sur les valeurs de ce tableau:

1) On constate de fortes variations de Ha2 avec la concentration en FeNi puisqu'on passe de 0 à 219 Oe; l'interprétation la plus plausible fait intervenir la relaxation progressive de la maille de FeNi lorsque la concentration augmente. Les paramètres de maille du FeNi et de l'Ag étant très différents (15% d'écart) les contraintes qui apparaissent au niveau des joints de grains sont susceptibles de provoquer ces variations de la constante d'anisotropie élastique.
2) Le paramètre Ny qui est classiquement relié à la forme du champ démagnétisant reflète ici plutôt la forme du champ dipolaire. Le rapport c/a qui donne le rapport de la longueur des axes d'un ellipsoide de révolution nous renseigne plus concrètement sur cette évolution. Pour l'alliage dilué le système se comporte comme une assemblée de sphères indépendantes (c/a=1), puis en augmentant la concentration les interactions plutôt ferromagnétiques déforment cet ellipsoide pour se rapprocher d'un champ démagnétisant de type plan (c/a=0).

En résumé la FMR nous a apporté les enseignements suivants:
- Comportement superparamagnétique (precession non uniforme à bas champ) et comportement ferromagnétique (raie à haut champ) des grains selon leur taille et la concentration.
- Apparition d'une température de blocage lors de la disparition du mode à bas champ.
- **Interactions en majorité ferromagnétiques** au dessous de T_B, qui se renforcent avec la concentration.
- Apparition de **contraintes élastiques importantes** aux fortes concentrations avec la relaxation des paramètres de maille du FeNi. Après traitement thermique ces contraintes devraient aussi apparaître dans les spectres de FMR.

II.C. Spectroscopie Mössbauer.

Des mesures de spectroscopie Mössbauer ont été réalisées sur des alliages $Ag_{64}FeCo_{36}$ par **Pierrette Auric** du CENG. Elles corroborent tout à fait les interprétations des mesures d'aimantation, mais apportent en plus des informations sur les concentrations en Ag et FeCo dans les grains superparamagnétiques et leurs évolutions avec les traitements thermiques.

Le principe de la spectroscopie Mössbauer est basé sur l'absorption résonante de photons γ, dont l'énergie correspond aux transitions entre l'état fondamental (I=1/2) et le premier état excité (I=3/2) d'un isotope du fer; le ^{57}Fe. Si l'environnement du ^{57}Fe n'est pas magnétique, on observe une seule énergie de transition entre les deux états (14.4 keV); le spectre d'aborption est donc caractérisé par une raie unique. Si au contraire le ^{57}Fe est soumis au champ local de ses voisins, les états se décomposent en **niveaux hyperfins** et le spectre est composé de 6 raies associées aux différentes transitions possibles. Expérimentalement on utilise une source de ^{57}Co qui décroit en ^{57}Fe excité qui se relaxe en émettant deux photons γ à 122 keV et 14.4 keV. Ce dernier est utilisé pour provoquer l'absorption résonante dans le matériau à analyser.

En analysant le flux de photons en sortie de l'échantillon on remonte aux champs hyperfins et donc à la nature (magnétique ou non) de l'environnement. Les sources Mössbauer ayant une largeur de raie d'émission trop faible pour couvrir l'étendue du spectre d'absorption, on utilise l'effet Doppler pour faire varier l'énergie et balayer tout le spectre. L'axe des abscisses des spectres est donc gradué en vitesse de rapprochement ou d'éloignement de la source par rapport à l'absorbeur.
Hormis l'apparition des raies hyperfines, la spectroscopie Mössbauer est aussi sensible au **gradient de champ électrique** créé par la non sphéricité de la distribution de charges électriques autour du noyau. Ce gradient de champ décompose l'état excité en deux niveaux d'où l'apparition de deux énergies de transition et ce quelque soit la nature de l'environnement. Signalons pour finir que les spectres Mössbauer peuvent présenter un décalage global du spectre appelé **décalage isomèrique** qui reflète les variations de densités électroniques au niveau du noyau entre l'absorbeur et la source. Le décalage est rapporté à une référence (souvent Fe métallique).

La figure VI.14 présente les spectres obtenus à 4K et 300K pour un échantillon brut de dépôt. Ils sont constitués d'une superposition de sextuplets magnétiques dont la distribution de champs hyperfins est donnée à droite, et d'un doublet quadrupolaire[13]. Les valeurs des paramètres Mössbauer pour cet échantillon ainsi que pour un échantillon recuit à 700K sont donnés dans le tableau VI.2.

		Contribution magnétique				Contribution non magnétique			
Echantillon	**T(K)**	**%**	**<H_{hf}> (T)**	**<IS> (mm/s)**	**LMH (mm/s)**	**%**	**IS (mm/s)**	**QS (mm/s)**	**LMH (mm/s)**
Brut de dépôt	**300**	**86**	**15.8**	**0.16**	**0.38**	**5**	**0.00**	**0.8**	**0.38**
						9	**0.22**	**0.90**	**0.90**
	4	**93**	**30.3**	**0.30**	**0.38**	**7**	**0.09**	**0.60**	**0.38**
Recuit 700K	**300**	**95**	**32.6**	**-0.02**	**0.32**	**5**	**-0.02**	**0.44**	**0.37**
	4	**96**	**33.7**	**0.14**	**0.32**	**4**	**0.11**	**0.44**	**0.32**

Tableau VI.2: Paramètres de Mössbauer calculés à différentes températures pour trois échantillons. La précision sur la valeur moyenne du champ hyperfin Hhf est 0.1T. Les valeurs du décalage isomèrique (IS) sont données par rapport au fer métallique. Les proportions entre contributions magnétiques et non magnétiques sont estimées à moins de 2% et la LMH correspond à la largeur à mi-hauteur d'une composante de la distribution de champs hyperfins.

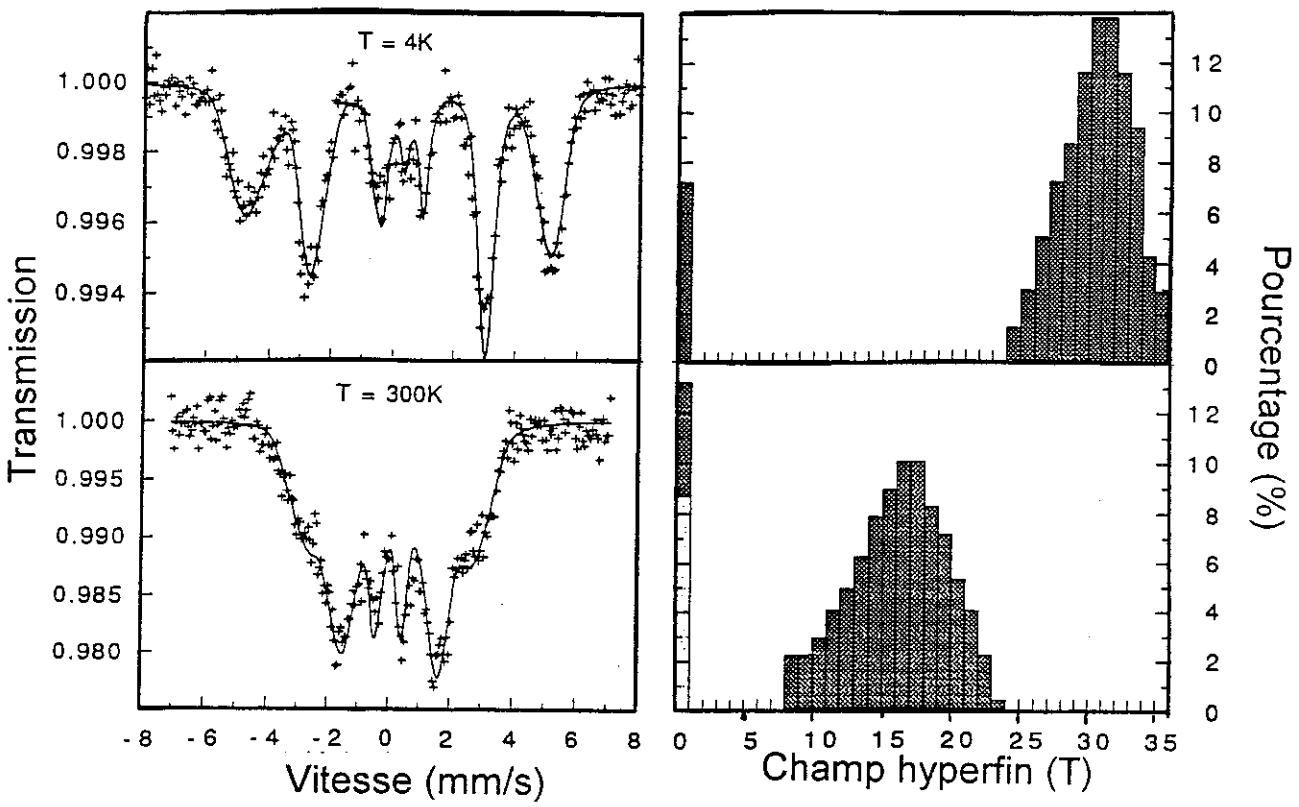


Figure VI.14: Spectres Mössbauer sur un alliage $Ag_{64}FeCo_{36}$ brut de dépôt à 300 et 4K. Les histogrammes donnent les distributions de champs hyperfins des sextuplets magnétiques.

Les valeurs des paramètres Mössbauer de la contribution magnétique à 4K de l'échantillon brut de dépôt ne correspondent pas à ceux d'un alliage ordonné ou désordonné de $Co_{70}Fe_{30}$ pur. En effet pour un tel alliage, la littérature donne une valeur de H_{hf} de 33.6T et un décalage isomérique compris entre 0.01 et 0.02 mm/s.[14] Notre alliage dont le $\langle H_{hf} \rangle$ est de 30.3T correspond plutôt à un alliage magnétique AgFeCo qui noie les grains de FeCo purs (≅4%) et les couple ferromagnétiquement. Cette image corrobore tout à fait les mesures d'aimantation. Toutefois les valeurs de H_{hf} peuvent être comparées à celle d'un alliage $Fe_xAg_{(1-x)}$ en faisant l'hypothèse que la substitution des atomes de Fe par du Co ne change pas les paramètres Mössbauer de façon radicale[15]; ainsi nos valeurs correspondraient à un alliage $Fe_{35}Ag_{65}$ ce qui est très proche de la stoechiomètrie désirée de $(FeCo)_{36}Ag_{64}$.

On détecte un effet de texture à partir de l'intensité relative des raies, qui indique une orientation des moments pratiquement dans le plan. Compte tenu de l'existence d'une matrice

magnétique, il est normal de trouver un effet d'anisotropie de forme du film qui favorise une aimantation globale dans le plan.
L'observation d'un doublet quadrupolaire (7% de l'intensité totale) est liée à une contribution des grains de FeCo les plus petits ou les plus concentrés en Ag. L'hypothèse d'atome de Fe non magnétiques complètement isolés dans la matrice peut être éliminée, car le décalage isomèrique serait alors bien plus fort (≅0.3 mm/s).
A 300K on relève encore une contribution magnétique importante (86%) avec une large distribution des champs hyperfins. L'alliage AgFeCo reste donc magnétique jusqu'à une température supérieure à 300K (380K d'après les M(T) fig VI.10). L'évolution des spectres entre 4 et 300K s'explique par une distribution de température de Curie des grains de FeCo ou FeCoAg selon leur taille ou leur concentration en Ag.

Après un traitement thermique à 700K, on observe une forte démixion du FeCo et de l'Ag ainsi qu'un grossissement des particules. La température de Curie moyenne des grains passe au dessus de l'ambiante et la dépendance thermique de l'aimantation devient très faible (cf fig VI.10). Les spectres Mössbauer traduisent bien toutes ces évolutions puisque les spectres obtenus à 300 et 4K sont quasiment semblables (fig VI.15).

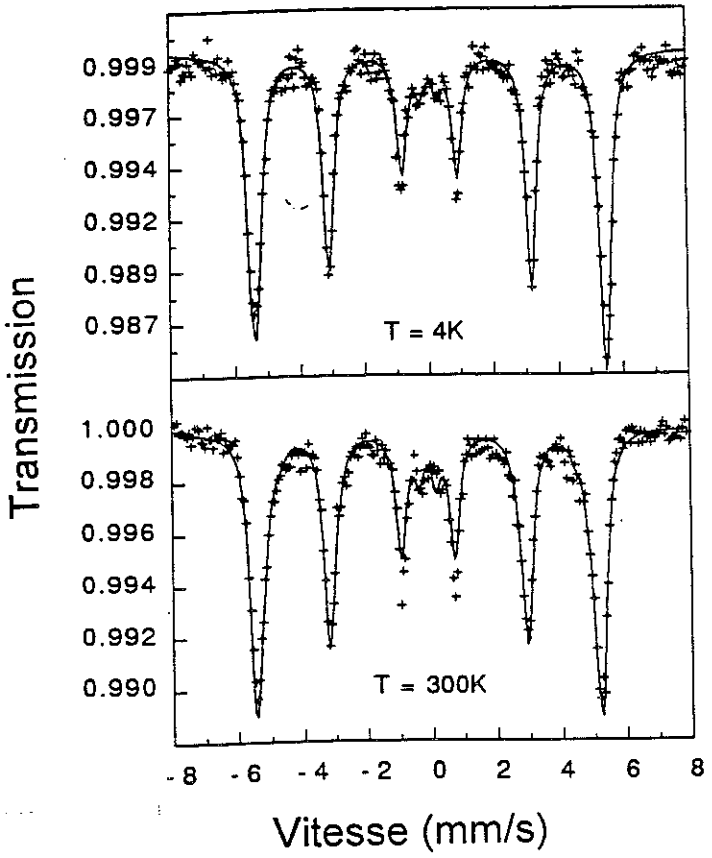


Figure VI.16: Spectres Mössbauer après recuit à 700K.

La contribution magnétique dépasse à toutes températures 95% avec un $<H_{hf}>$ de l'ordre de 33T: les grains de $Co_{70}Fe_{30}$ ont donc un comportement ferromagnétique équivalent à une couche de $Co_{70}Fe_{30}$ massive. La très faible contribution non magnétique (5%) reflète la part des grains de FeCo n'ayant pas atteint une taille suffisante pour être ferromagnétiques. Cette contribution faible mais non nulle, pourra être handicapante pour la saturation des couches lors des mesures de transport!
Enfin signalons l'évolution de l'intensité relative des différentes raies magnétiques qui définit la texture. Après le recuit à 700K le rapport s'établit à 3/2/1 ce qui correspond à une distribution isotrope des directions d'aimantation. Au dessus de T_B on a donc des couplages aléatoires qui ne favorisent aucune direction d'aimantation.

CONCLUSION

Ces analyses structurales et magnétiques des alliages hétérogènes $Ag_{(1-x)}FeNi_x$ et $Ag_{(1-x)}FeCo_x$ ont permis de bien éclaircir la situation pour l'interprétation des propriétés de transport.

Structure des alliages:
Les échantillons sont constitués généralement d'une **assemblée de particules de tailles et de compositions très variées**; l'image la plus réaliste étant celle d'un coeur concentré en élément magnétique et d'une enveloppe où la concentration d'Ag augmente lorsqu'on s'éloigne du coeur. Ces particules et leur enveloppe prennent des formes très ramifiées dont les limites sont très floues (images MET). Lors des recuits on observe une démixtion des deux éléments, les particules magnétiques prenant une forme de plus en plus compacte et sphérique.
Les spectres de RX permettent de quantifier les concentrations moyennes d'Ag dans les enveloppes qui varient entre 25 et 40% selon les concentrations en éléments magnétiques, et les tailles moyennes de grains. On note ainsi que l'alliage brut à base de CoFe présente des grains de taille bien inférieure (<10Å) comparé à l'alliage à base de FeNi (40Å). Au cours des recuits la démixion permet aux grains d'atteindre des tailles supérieures à 100Å!

Comportements magnétiques:
On relève quatre types de comportements selon la taille des grains, leur concentration en Ag et la température de mesure.
- Le **comportement superparamagnétique** est le plus courant. Il concerne tous les alliages faiblement concentrés où les tailles de grains sont faibles et/ou l'Ag se retrouve mélangé aux éléments magnétiques. Ce comportement disparait aux fortes concentrations ou après recuit lorsque les grains ont atteint une taille suffisante et sont purifiés.
- Le **comportement « cluster glass »** apparait généralement en baissant la température au dessous de T_B. Il se caractérise par un blocage des aimantations des grains qui sont soumises à des interactions contradictoires venant de l'ensemble des voisins. La nature des interactions est

assez difficile à établir: couplages dipolaires et/ou couplages de type RKKY, mais les mesures de résonance ferromagnétique semblent indiquer une résultante plutôt ferromagnétique qui se renforce en baissant la température. Après recuit, la meilleure définition des grains moyenne mieux les interactions et on retrouve une résultante nulle avec une distribution isotrope des directions d'aimantation (spectres Mössbauer à 700K). Ce comportement « cluster-glass » est le plus propice au développement d'un transport de type GMR surtout lorsque les interactions moyennes sont nulles!

- Le **comportement à anisotropie aléatoire** apparait à très basse température lorsque l'anisotropie propre des grains domine les couplages. Il se caractérise principalement par une forte susceptibilité initiale.

- Enfin le **comportement ferromagnétique classique** apparait pour les fortes concentrations lorsqu'il y a percolation des grains ou lorsque les distances entre grains sont faibles par rapport à la portée des interactions. Le système se comporte alors comme une couche ferromagnétique continue.

BIBLIOGRAPHIE

[1] A.E.Berkowitz, J.R.Mitchell, M.J.Carey, A.P.Young, S.Zhang, F.E.Spada, F.T.Parker, A.Hutten, G.Thomas, Phys.Rev.Lett., **68**, (1992), 3745

[2] C.Cowache, B.Dieny, S.R.Teixeira, O.Redon, Phys.Met.Met., **79**, (1995), 61

[3] J.P.Perez, V.Dupuis, J.Tuaillon, A.Perez, V.Paillard, P.Melinon, M.treilleux, L.Thomas, B.Barbara, B.Bouchet-Fabre, J.Magn.Magn.Mat., **145**, (1994), 74

[4] J.S.Jiung, J.Q.Xiao, L.C.Chien, Appl.Phys.Lett., **61**, (1992), 2362

[5] B.Dieny, S.R.Teixeira, B.Rodmacq, C.Cowache, S.Auffret, O.Redon, J.Pierre, J.Magn.Magn.Mater., **130**, (1994), 197

[6] F.Conde, C.Gomez-Polo, A.Hernando, J.Magn.Magn.Mater., **138**, (1994), 123

[7] J.R.Childress, C.L.Chien, Phys.Rev.B, Vol **43**, N°10, (1991), 8089

[8] H.Hurdequint, C.Chappert, K.Le Dang, P.Beauvillain, D.Renard, Phys.Rev.B, Vol **34**, N°5, (1986), 3192

[9] B.Heinrich, J.F.Cochran, M.Kowalewski, J.Kirschner, Z.Celinski, A.S.Arrott, K.Myrtle, Phys.Rev.B, Vol **44**, N°17, (1991), 9348

[10] S.R.Teixeira, B.Dieny, A.Chamberod, C.Cowache, S.Auffret, P.auric, J.L.Rouvière, O.Redon, J.Pierre, J.Phys: Condens.Matter, **6**, (1994), 5545

[11] J.Smit, H.C.Beljers, Philips Res.Rep., **10**, (1955), 113

[12] P.Bruno, Thèse Université Paris Sud, (1989)

[13] P.Auric, S.R.Teixeira, B.Dieny, A.Chamberod, O.Redon, J.Magn.Magn.Mater, **146**, (1995), 153

[14] B.de Mayo, D.W.Forester, S.Spooner, J.Appl.Phys., **41**, (1970), 1319
I.Vincze, I.A.Campbell, A.J.Meyer, Sol.State.Comm., **15**, (1974), 1495
B.Fultz, H.Hamdeh, J.Okamoto, Hyp.Int., **54**, (1990), 799

[15] C.Larica, E.Baggio-Saitovitch, X.Sike, Hyp.Int., **66**, (1991), 339
C.L.Chien, K.M.Unruh, Phys.Rev.B, **28**, (1983), 1214

CHAPITRE VII

TRANSPORT DANS LES SYSTEMES GRANULAIRES.

INTRODUCTION.....171

I. DE LA MR DE DESORDRE DE SPIN A L'AMR: L'EFFET DE CONCENTRATION.....171
I.A. Dépendance thermique de la résistivité.....171
I.B. Les 4 types de MR des systèmes granulaires.....174
I.C. Isotropie de la MR dans les systèmes granulaires.....179
I.D. Comparaison des systèmes granulaires.....180

II. CORRELATION ENTRE TRANSPORT ET MICROSTRUCTURE.....182
II.A. Modèles d'ajustement des caractéristiques de transport.....182
II.B. Application des modèles.....184
II.C. Definition de la taille optimale et comparaison avec la théorie.....189

III. AMELIORATION DES PROPRIETES PAR TRAITEMENTS THERMIQUES.....191
III.A. Amélioration de l'amplitude de GMR.....192
III.B. Réduction des champs de saturation.....193

CONCLUSION.....195

INTRODUCTION

L'étude des propriétés de transport est la principale motivation des nombreux travaux que l'on peut trouver dans la littérature. Il faut dire que de nombreux espoirs sont fondés sur ces systèmes au niveau des applications du fait de leur simplicité de fabrication (co-pulvérisation) et des faibles contraintes lors du dépôt (pas de critères d'épaisseur de couches). Les premiers résultats semblent encourageants puisque les amplitudes de MR se situent entre celles des transports planaires et perpendiculaires des systèmes multicouches, du fait de la configuration hybride des systèmes granulaires. Cependant les caractéristiques sont souvent loin d'être exploitables technologiquement à cause de l'importante contribution superparamagnétique à l'ambiante, qui empêche toute saturation et nuit à la susceptibilité initiale.

Nous allons analyser dans ce dernier chapitre les divers types de MR que l'on peut rencontrer suivant la température de mesure ou la concentration en éléments magnétiques. Nous verrons qu'il est possible dans certains cas d'élaborer quelques modèles d'ajustement pour corréler les propriétés de transport et structurales et ainsi définir les tailles optimales de particules. Enfin nous montrerons qu'il est tout de même possible d'optimiser ces systèmes pour des applications électrotechniques moins « high tech » que les têtes de lecture.

I.DE LA MR DE DESORDRE DE SPIN A L'AMR: L'EFFET DE CONCENTRATION

Les mesures magnétiques du chapitre précédent nous ont permis de distinguer 4 comportements différents liés à la concentration ou aux températures de mesure:
- le superparamagnétisme.
- l'état « cluster glass ».
- l'état gelé à anisotropie aléatoire.
- l'état ferromagnétique.

Au niveau des propriétés de transport chacun de ces comportements sera associé à un type de magnétorésistance, dont nous mettrons en évidence les principales caractéristiques.

I.A. Dépendance thermique de la résistivité.

Les mesures d'aimantation ZFC se sont montrées très sensibles au comportement magnétiques des particules, ce qui a permis la détermination des températures de changement de régime entre les différents états. La résistivité qui est sensible uniquement aux fluctuations spatiales de l'aimantation devrait elle aussi ressentir ces differents états par le biais de l'extension de ces fluctuations qui change d'un état à l'autre. La figure VII.1 reporte les dépendances thermiques isochamps des résistivités de 3 alliages de FeNi pour des champs magnétiques variant entre 0 et 50kOe. On constate de nettes différences selon les concentrations tant au niveau des amplitudes des variations thermiques que de l'influence du

champ magnétique: plus les échantillons sont concentrés, plus les variations thermiques sont importantes et plus l'effet du champ magnétique s'amoindrit. L'interprétation des variations thermiques est basée sur le modèle de désordre de spin de de Gennes et Friedel[1] : elles sont faibles dans le domaine paramagnétique ou superparamagnétique puisqu'on a uniquement celles de la résistivité de phonons (loi de Bloch-Grüneisen) mais deviennent plus conséquentes au dessous de T_C avec l'apport de la contribution magnétique ρ_m (car ρ_m est indépendant de T pour $T>T_C$). Ainsi la faible amplitude des variations thermiques de l'échantillon à 19%at de FeNi ($\cong 3\mu\Omega$cm) s'explique par sa faible température d'ordre (T_C=20K), alors qu'au contraire l'échantillon le plus concentré s'ordonnant au dessus de l'ambiante présente la plus forte dépendance thermique de ρ ($11\mu\Omega$cm).

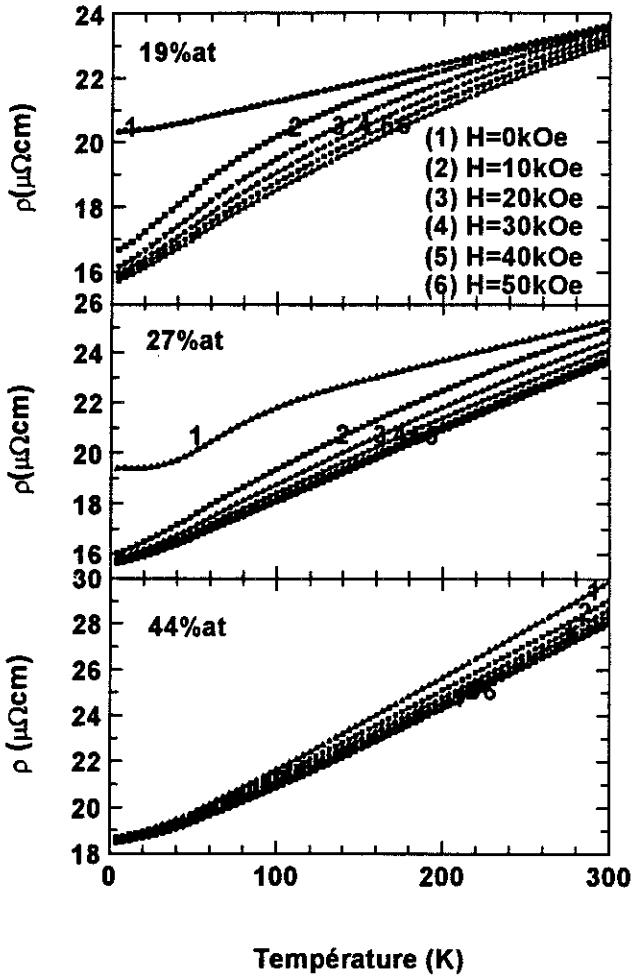


Figure VII.1: Variations thermiques isochamps de la résistivité de 3 échantillons d'alliages à base de FeNi.

L'influence du champ magnétique qui apparait par la différence de résistivité entre les mesures en champ nul et sous champ est elle aussi reliée à l'ordre puisqu'elle est maximale autour de T_C. En augmentant la concentration on voit donc se déplacer ce maximum entre les très basses

températures et l'ambiante. Notons toutefois que pour l'échantillon le plus concentré on ne détecte même pas le maximum et que l'influence du champ est très faible car les fortes interactions ferromagnétiques entre particules réduisent considérablement les désorientations entre aimantations. Malgré les différences relevées dans les dépendances thermiques de ρ, il semble impossible de remonter aux températures de transition entre les états magnétiques. Pourtant si on introduit l'effet du champ magnétique en traçant $\rho_m=\rho(H=0)-\rho(H=50kOe)$ la mesure devient alors sensible aux divers comportements magnétiques (cf figure VII.2)

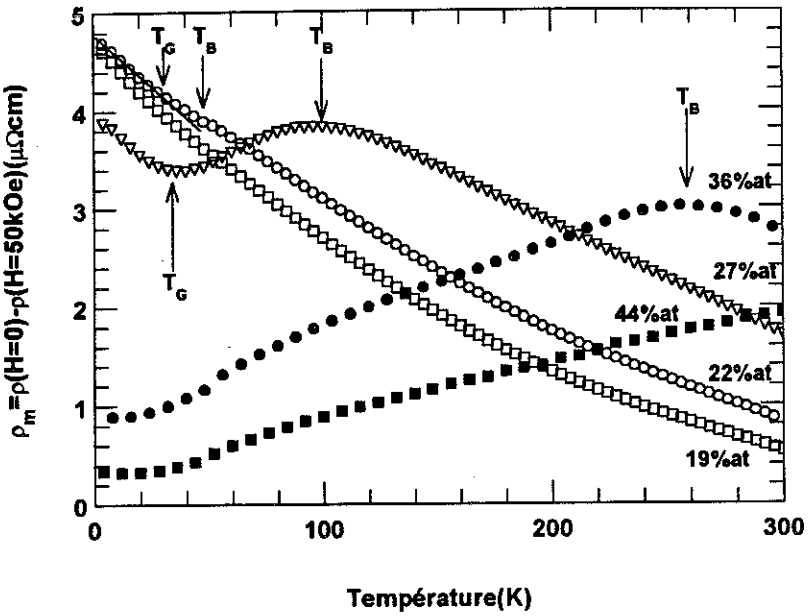


Figure VII.2: Variations thermiques de la résistivité magnétique de 5 alliages à base de FeNi. Les annotations T_B et T_G renvoient aux températures de blocage et de gel.

A part pour l'échantillon le plus faiblement concentré où on ne détecte aucun accident dans la variation thermique de ρ_m car T_B et T_G sont trop basses et rapprochées, on distingue facilement dans les autres cas les diverses transitions. L'échantillon avec 27%at est le plus caractéristique de la série car T_B et T_G sont bien marqués: ρ_m après le premier maximum autour de T_B=100K diminue à cause des interactions majoritairement ferromagnétiques entre particules. A 35K l'évolution s'inverse marquant le début du comportement à anisotropie aléatoire. Les aimantations redistribuées aléatoirement selon les anisotropies locales, permettent une réaugmentation du nombre de diffusion sur le lpm d'où l'inversion du ρ_m. Aux plus fortes concentrations l'évolution est un peu différente car le blocage intervient peu au dessous de l'ambiante. La décroissance de ρ_m est quasi continue sur toute la plage de température avec un point d'inflexion autour de 50K où le caractère ferromagnétique semble se renforcer sûrement à cause d'une anisotropie de forme des particules privilégiant les directions du plan.

Les variations thermiques de ρ_m sont donc aussi sensibles que celle de l'aimantation mais elles nous renseignent en plus sans ambiguité sur le caractère ferromagnétique des interactions (ce qui est cohérent avec les mesures de FMR). Les auteurs dans la littérature prétextent souvent

l'insensibilité de ρ aux fluctuations temporelles, pour la délaisser comme moyen d'accés aux différents régimes magnétiques, les mesures précédentes démontrent que cet argument est injustifié car l'extension des fluctuations spatiales en fait une sonde tout aussi valable.

I.B. Les 4 types de MR des systèmes granulaires.

Au niveau du transport proprement dit les différents états magnétiques vont se différencier par leur susceptibilité en champs faibles ou leur atteinte à saturation. Pour l'illustrer nous présentons sur la figure suivante les divers types de MR rencontrés dans les alliages de FeNi.

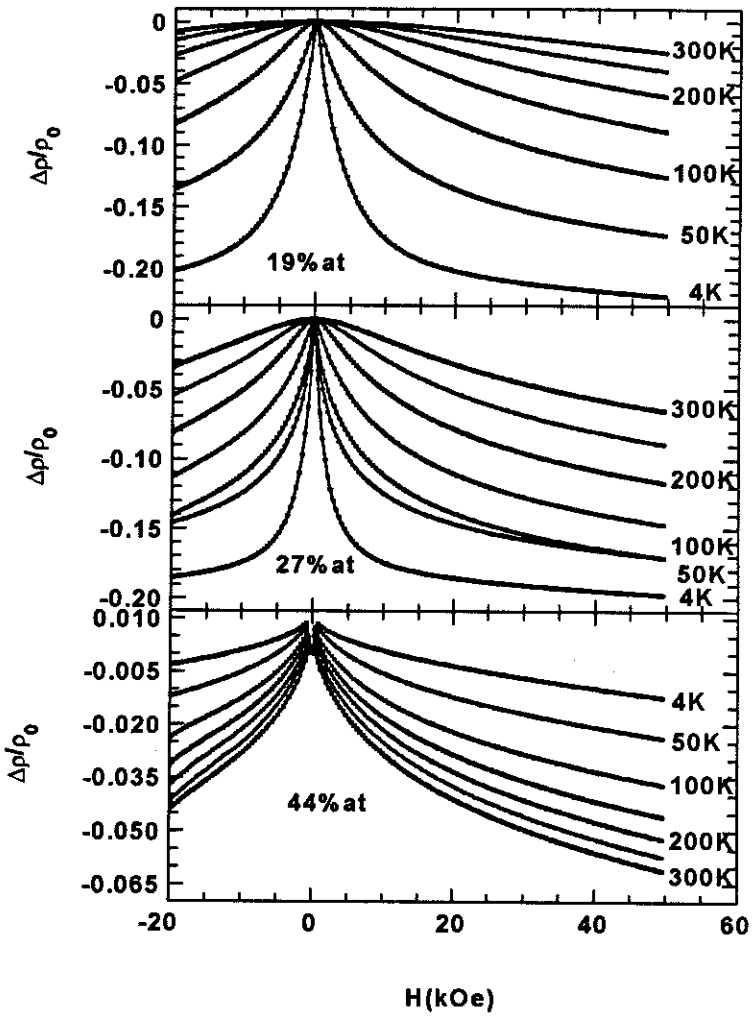


Figure VII.3: Variations thermiques de la magnétorésistance pour 3 concentrations de FeNi.Ces caractéristiques montrent les divers types de MR présents dans les alliages granulaires: MRDS, MRPG, MRPI et AMR (voir texte pour détail des sigles).

• La magnéto-résistance de désordre de spin

L'échantillon avec 19%at de FeNi qui reste superparamagnétique jusqu'à 20K nous permet de décrire le premier type de MR, le plus courant dans les alliages granulaires, la magnéto-résistance de désordre de spin ou **MRDS**. Elle se reconnait grâce à 3 critères:

-Une susceptibilité initiale nulle.

-Une saturation très difficile même sous très fort champ.

-Le maximum d'amplitude autour de T_B.

Au niveau microscopique, compte tenu du très faible temps d'interaction électron/particule, les électrons « voient » des aimantations fixes. Les mécanismes de diffusion sont donc les mêmes que dans les multicouches, i.e. les électrons subissent des diffusions dépendantes du spin aux interfaces ou dans le volume des particules. La principale différence est liée au désordre statistique des aimantations qui égalise les lpm des spins ↑ et ↓ en champ nul. Sous champ les aimantations tendent à s'aligner dans la direction de H ce qui provoque la différenciation des lpm selon leur spin et la chute de résistivité. L'amplitude semble s'accroître lorsqu'on se rapproche de T_B simplement parce qu'on fait une mesure en champ fini et qu'on profite de la réduction de la résistivité de phonons. Si on pouvait saturer les échantillons dans tous les cas, et éliminer la contribution de phonons, l'amplitude resterait constante. Seule la susceptibilité en champ faible qui augmente lorsqu'on se rapproche de la température d'ordre modifie la forme générale des courbes.

Si on compare les amplitudes de MRDS autour de T_B pour différentes concentrations, on peut constater des disparités qui reflètent l'optimisation du rapport (densité de particules) / lpm. Il sera donc possible de définir une concentration et une taille de grain optimale.

• La magnéto-résistance de particules gelées

Au dessous de 20K, les aimantations se gélent dans une configuration à anisotropie aléatoire. Au niveau du transport la description précédente reste qualitativement valable quoique les aimantations présentent désormais un désordre statistique stable au cours du temps. Pourtant cette magnéto-résistance de particules gelées (**MRPG**) se différencie de la MRDS à plusieurs niveaux:

- Par une plus forte susceptibilité initiale
- Par une amplitude bien plus importante puisque l'alignement des aimantations est bien plus efficace que dans le régime superparamagnétique.
- Par une meilleure saturation pour la même raison.

Remarque: Lorsque le gel intervient dans les systèmes concentrés, il renforce les interactions ferromagnétiques; la MRPG est alors d'amplitude plus réduite car on part en champ nul d'une configuration où les lpm des spins ↑ et ↓ sont déjà différenciés.

• La magnéto-résistance de particules en interactions

L'échantillon avec 27%at de FeNi qui est globalement assez semblable au précédent se démarque par la magnétorésistance observée entre T_B=100K et T_G=35K. En effet dans cet

intervalle de température des corrélations longue portée (≅lpm) apparaissent entre les particules, redéfinissant la longueur caractéristique du désordre des aimantations selon le signe de l'interaction. Si les interactions sont plutôt ferromagnétiques (ce qui est le cas dans les alliages de FeNi) cette longueur caractéristique peut s'étendre à plusieurs particules. La magnéto-résistance qui en découle que nous nommerons **MRPI** (magnéto-résistance de particules en interactions) est alors caractérisée par une forte susceptibilité, une bonne saturation mais surtout une amplitude qui diminue lorsqu'on baisse la température à cause du renforcement des interactions ferromagnétiques. Cette MRPI est bien visible sur l'échantillon le plus concentré au dessous de 300K. Si les interactions moyennes entre particules sont nulles à cause de la distribution des distances, il est alors difficile de faire la différence avec la MRPG. C'est seulement en comparant les mesures d'aimantation et de transport que l'on peut faire la différence entre ces deux régimes de transport.

• L'AMR

Cette anisotropie de la Magnéto-résistance apparait classiquement dans les couches ferromagnétiques, mais elle peut aussi être présente dans les systèmes granulaires concentrés (cf échantillon avec 44%at). Elle se caractérise par une très faible amplitude (1 à 2%), la présence d'un double maximum en configuration longitudinale et surtout une dépendance avec l'orientation du champ magnétique. Pour bien se convaincre qu'il s'agit d'une AMR nous avons reporté sur la figure VII.4 les résistivités mesurées dans les deux configurations de champs dans l'échantillon le plus concentré. On retrouve bien l'image classique de l'AMR telle que nous l'avons décrite dans le Ch I.

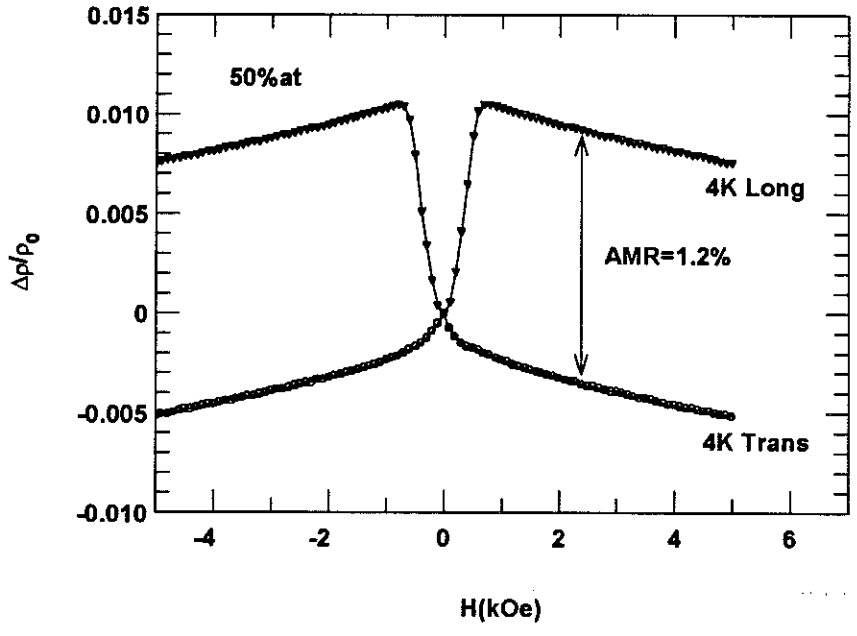


Figure VII.4: Magnétorésistance à 4K d'un alliage de FeNi fortement concentré. Les évolutions opposées des résistivités en longitudinal et transverse confirment l'effet d'AMR.

En rassemblant les diverses données des mesures de transport dans les alliages de FeNi, nous avons pu reconstituer le diagramme de phase magnétique de ce système (figure VII.5). Quelques précisions sur sa construction:

-La limite entre les zones de superparamagnétique et de blocage est donnée par les températures de blocage. La linéarité de la frontière montre que T_B varie de 12.5K/%at. Cette linéarité a aussi été observée dans des alliages $Cu_{(1-x)}Co_x$[2] avec une pente de 23K/%at.

-La zone de gel est limitée aux comportements à anisotropie aléatoire ce qui explique sa faible extension. Nous avons vu que les échantillons concentrés présentaient aussi une phase de gel mais qui renforçait les interactions ferromagnétiques au lieu de les combattre, nous ne l'avons donc pas inclus.

-Dans le domaine du blocage on regroupe tous les types d'interactions entre particules qu'elles soient aléatoires (faibles concentrations) où ferromagnétiques.

-Nous avons caractérisé le domaine du ferromagnétisme par la présence d'AMR. Certes cette limite n'est pas aussi franche car l'apparition de l'AMR est souvent mélangée à la MRPI, mais elle marque tout de même une nouvelle transition par rapport à l'état bloqué.

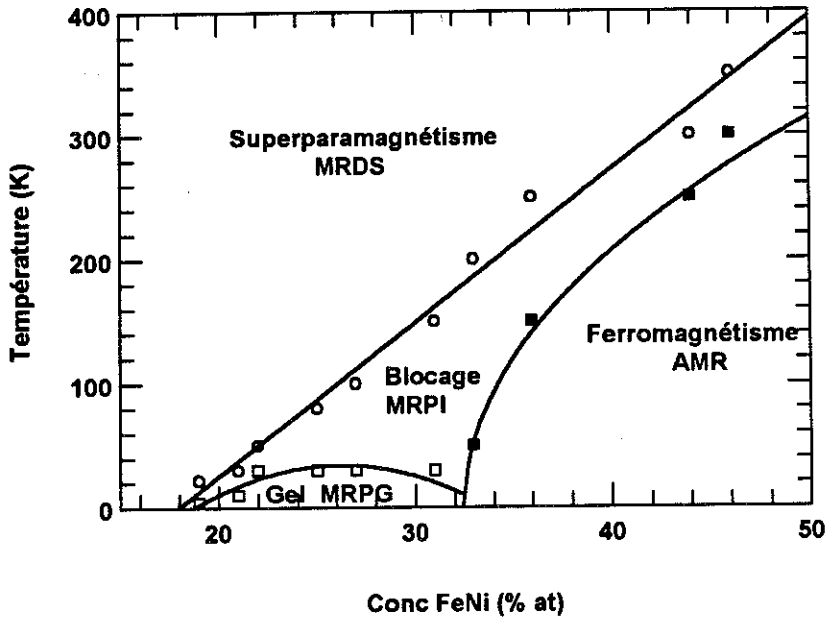


Figure VII.5: Diagramme de phase dans les alliages $Ag_{(1-x)}FeNi_x$. Les sigles MRDS, MRPI, MRPG, AMR font référence aux divers types de magnétorésistance expliqués dans le texte.

Les propriétés de transport des alliages de FeCo se différencient nettement des précédentes, comme le montre la figure VII.6, à cause des plus faibles tailles de particules. Le premier alliage avec 35%at de FeCo, déposé à 100K, présente les 3 types de MR rencontrés dans les alliages dilués de FeNi: MRDS jusqu'à 200K, MRPI (interactions aléatoires) entre 150 et 50K et MRPG à 4K. Ces caractéristiques sont comparables à celles d'un alliage de FeNi à 27%at, ce qui confirme que les tailles moyennes de grains sont bien inférieures à concentration

égale. Les plus fortes amplitudes dans les états gelés ou autour de T_B indiquent que la configuration en petits grains optimise mieux le rapport (densité de particules) / lpm; par ailleurs le terme α (lié à l'asymmétrie de densité de spin au niveau de Fermi) plus important dans le FeCo peut être aussi à l'origine de cette différence comme dans les multicouches.

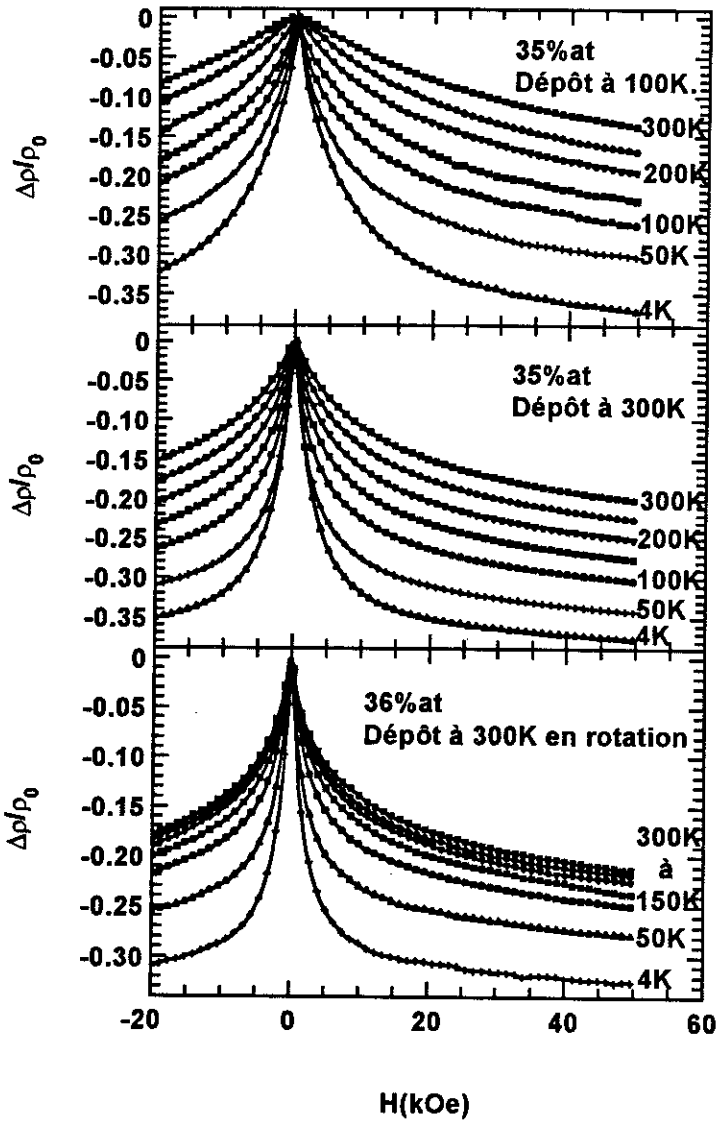


Figure VII.6: Variations thermiques de la magnétorésistance pour 3 échantillons d'alliage de FeCo avec des conditions de dépôt différentes.

Pour une concentration équivalente mais avec un dépôt à 300K, la plus grande mobilité atomique lors du dépôt a permis un accroissement de la taille moyenne des particules qui reste tout de même inférieure à celle des particules de FeNi. Ce gain de taille est pourtant suffisant pour repousser le blocage au dessus de 300K car la forte anisotropie magnétocristalline du FeCo compense le faible volume des grains dans l'égalité $KV=k_BT_B$. Le régime superparamagnétique disparait donc totalement. La MRPI contrairement aux alliages de FeNi augmente rapidement en baissant la température car les grains étant petits restent suffisamment

éloignés pour éviter l'apparition d'interactions ferromagnétiques. Au niveau des amplitudes on récupère à 300K la même amplitude qu'au moment du blocage de l'échantillon précédent soit 20% dans 50kOe, et on monte à plus de 30% à 100K. La plus forte taille de grains par rapport à l'échantillon précédent est tout de même appréciable car elle permet un gain sensible de susceptibilité en champ faible et une meilleure saturation.

Le dernier échantillon déposé à 300K mais avec rotation correspond à celui analysé dans le chapitre précédent; il présente un comportement encore un peu différent avec des caractéristiques un peu meilleures à l'ambiante puisqu'on atteint 21% de MR avec une susceptibilité encore accrue. La dépendance thermique de la MR est par contre bien moindre; il semble dans ce cas que l'augmentation du lpm est compensée par des interactions plutôt ferromagnétiques qui réduisent ρ_m pour donner une amplitude quasiment constante (25% à 100K). Ce comportement est à rapprocher de celui de l'échantillon avec 27%at de FeNi entre 100 et 50K. Cette stabilité de la MR est cohérente avec les mesures d'aimantation et d'effet Mössbauer qui montraient pour l'échantillon brut de dépôt des interactions globalement ferromagnétiques du fait de la matrice magnétique. Pour les échantillons déposés sans rotation le mélange entre Ag et FeCo n'a pas été aussi intime, la matrice est restée non magnétique et les interactions sont plus aléatoires. A basse température (T<50K) le gel des aimantations provoque une MRPG dont l'amplitude s'accroit rapidement. Notons pour ce dernier cas une nette réduction de l'amplitude à 4K qui peut avoir deux origines: un moins bon compromis (densité) / lpm ou une configuration à anisotropie aléatoire qui n'élimine pas complétement les corrélations entre grains.

Les alliages de FeCo sont plus intéressants que ceux de FeNi car grâce à leur forte anisotropie magnétocristalline le volume des particules correspondant au blocage est plus faible. De ce fait on observe le blocage à 300K pour des concentrations en FeCo plus faibles (≅30%at) que dans le FeNi (≅39%at). Au niveau du transport à 300K, les grains de FeCo étant petits et espacés il n'existe aucune interaction entre eux même au dessous de T_B (cf fig VII.6 au centre). On peut donc optimiser dans ces alliages le rapport (densité de particules) / lpm en augmentant la concentration jusqu'au seuil d'apparition des couplages (≅38%at). L'amplitude de MR que l'on récupère est alors bien plus importante que dans les alliages de FeNi (21% contre 7.5%).

I.C. Isotropie de la MR dans les systèmes granulaires.

Les caractéristiques de transport dans les multicouches sont anisotropes par rapport à la direction d'application du champ magnétique à cause du champ démagnétisant qui favorise les directions de facile aimantation dans le plan. On observe donc une largeur à mi-hauteur des pics très importante en champ perpendiculaire.
Dans les systèmes granulaires, lorsque les particules sont indépendantes, les mesures sont quasiment insensibles à la direction d'application du champ magnétique. Par contre lorsque des

interactions ferromagnétiques apparaissent un effet de couche mince se fait sentir en favorisant les directions du plan (cf résonance ferromagnétique des alliages concentrés). La figure VII.7 montre l'élargissement progressif de la mesure en perpendiculaire lorsque la concentration augmente.

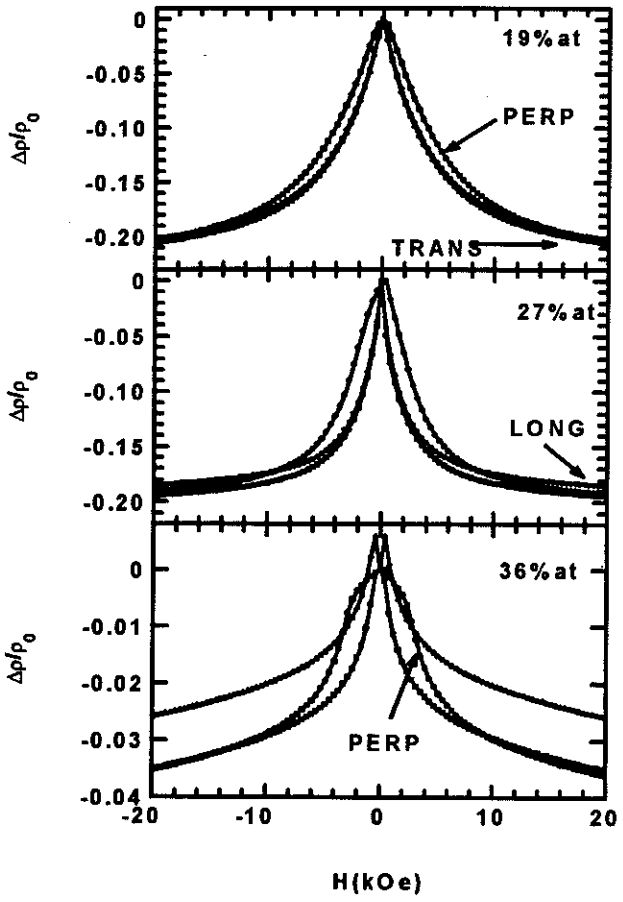


Figure VII.7: Mesures de transport pour 3 directions d'application du champ magnétique dans des alliages de FeNi.

I.D. Comparaison des systèmes granulaires.

La littérature est une source quasi inépuisable d'études des systèmes granulaires, mais nous nous contenterons de trois alliages pour la comparaison. La figure VII.8 rassemble les amplitudes de MR relevées à 300 et 4K pour 5 alliages différents[3 4 5].
Première constatation les alliages se séparent en trois groupes: ceux à base de Co ou FeCo dans l'Ag qui présentent les plus fortes amplitudes à 300 ou 4K, ceux à base de Fe ou FeNi dans l'Ag qui ont des amplitudes plus faibles et des maxima décalés vers les plus faibles concentrations à 4K, et enfin l'alliage de Cu et de Co qui a la plus faible amplitude à toutes températures. Ce dernier fait est simplement dû à la solubilité du Co et du Cu qui crée une matrice magnétique couplant ferromagnétiquement les grains entre eux. Après traitement

thermique les phases se séparent et les auteurs mesurent une amplitude de 22% à basse température. La différence de comportement entre les alliages à base de Fe ou de Co semble elle plutôt liée à la taille moyenne des particules.

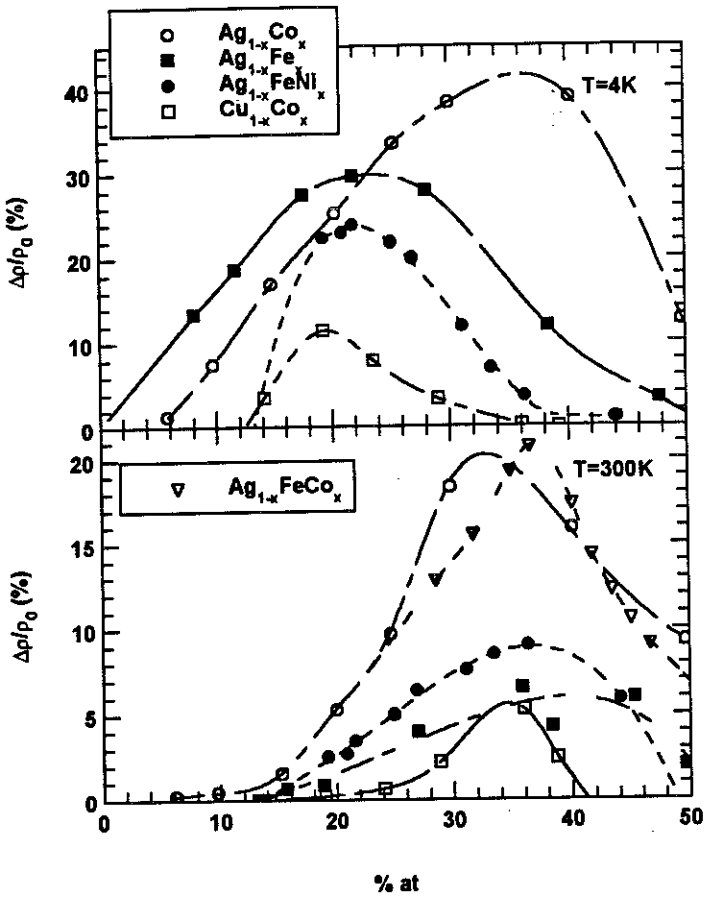


Figure VII.8: Comparaison des résultats de transport à 300 et 4K pour 5 systèmes différents. Les données de $Ag_{(1-x)}Co_x$, $Ag_{(1-x)}Fe_x$, $Cu_{(1-x)}Co_x$ sont tirées respectivement des références [3] à [5].

Les systèmes à base de Co présentent semble-t-il la faculté de former des particules de plus petite taille que les autres à concentration égale, ce qui permet de repousser l'apparition des interactions ferromagnétiques vers les plus fortes concentrations. Ainsi à 4K alors que les alliages à base de Fe présentent des couplages ferromagnétiques à partir de 25%at, ceux à base de Co en développent uniquement au dessus de 36%at. De plus la plus forte anisotropie magnétocristalline du Co provoque un blocage des particules à plus faible volume. Ainsi à 300K le blocage apparait pour des concentrations bien plus faibles que les autres systèmes, mais les grains étant petits et espacés la MR peut encore évoluer en augmentant la concentration jusqu'au moment où les premières interactions ferromagnétiques apparaissent. A ce moment le rapport densité de particules / lpm est bien plus fort que dans les autres alliages ce qui explique la grande différence d'amplitude de MR à 300K. Un dernier avantage des

particules à base de Co, le plus fort terme α, peut jouer un rôle important comme dans les multicouches.

II. CORRELATION ENTRE TRANSPORT ET MICROSTRUCTURE.

II.A. Modèles d'ajustement des caractéristiques de transport.

Etant donné la diversité des comportements magnétiques nous ne pourrons nous restreindre à un modèle unique pour l'ajustement de toutes les caractéristiques de transport. Nous utiliserons deux modèles: l'un s'appliquant au domaine superparamagnétique et l'autre aux particules en interactions faibles. Ces deux modèles présentent tout de même quelques points communs:

1) Nous considérerons à toutes températures un comportement de type superparamagnétique des aimantations des particules: les mesures de transport n'étant sensibles qu'aux fluctuations spatiales ne font la différence entre des aimantations qui fluctuent ou qui sont bloquées que par la longueur caractéristique des corrélations spatiales.

2) Nous utiliserons aussi dans tous les cas une distribution de tailles des particules qu'il est important de choisir convenablement: Parker a montré qu'en utilisant une taille unique, modulable avec la concentration, on pouvait déjà ajuster correctement les caractéristiques de transport.[6] Dans un modèle un peu plus élaboré, Mahmood en utilisant un histogramme de 3 probabilités pour les tailles de particules affine encore ces ajustements et renseigne un peu mieux sur l'étendue de la distribution de taille.[7] L'avantage indéniable de ces deux types de distribution est la possibilité de définir une expression analytique pour l'ajustement des courbes de transport. Malgré tout nous avons préféré une distribution continue de type Log-Normale plus réaliste, telle que celle utilisée par Chantrell[8] pour la description de l'aimantation:

$$f(D) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}D}\exp\left(-\frac{\mathrm{Ln}^2\frac{D}{\overline{D}}}{2\sigma^2}\right) \qquad (1)$$

En second lieu nous devons définir la corrélation entre la MR et l'aimantation. Dans le domaine superparamagnétique la MR varie généralement comme le carré de (M/Ms).[9] La figure VII.9 a) montre que cette hypothèse est raisonnable au dessous de (M/Ms)=0.8. Nous écrirons donc que l'amplitude de MR suit en fonction du champ magnétique une loi du type:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \alpha \left(\frac{\int_0^\infty v.f(v)L\left(\frac{M_s vH}{k_B T}\right)dv}{\int_0^\infty v.f(v)dv} \right)^2 \qquad (2)$$

où α définit l'amplitude de MR, v est le volume de la particule considérée, f(v) est la fonction de distribution des tailles, L est la fonction de Langevin et M_S correspond à la valeur de l'aimantation à saturation dans les matériaux massifs (860emu/cm3 pour FeNi et 1693emu/cm3 pour FeCo) . Dans tous nos ajustements nous supposerons que les particules sont sphériques comme suggéré par la résonance ce qui permet de remonter facilement aux diamètres.

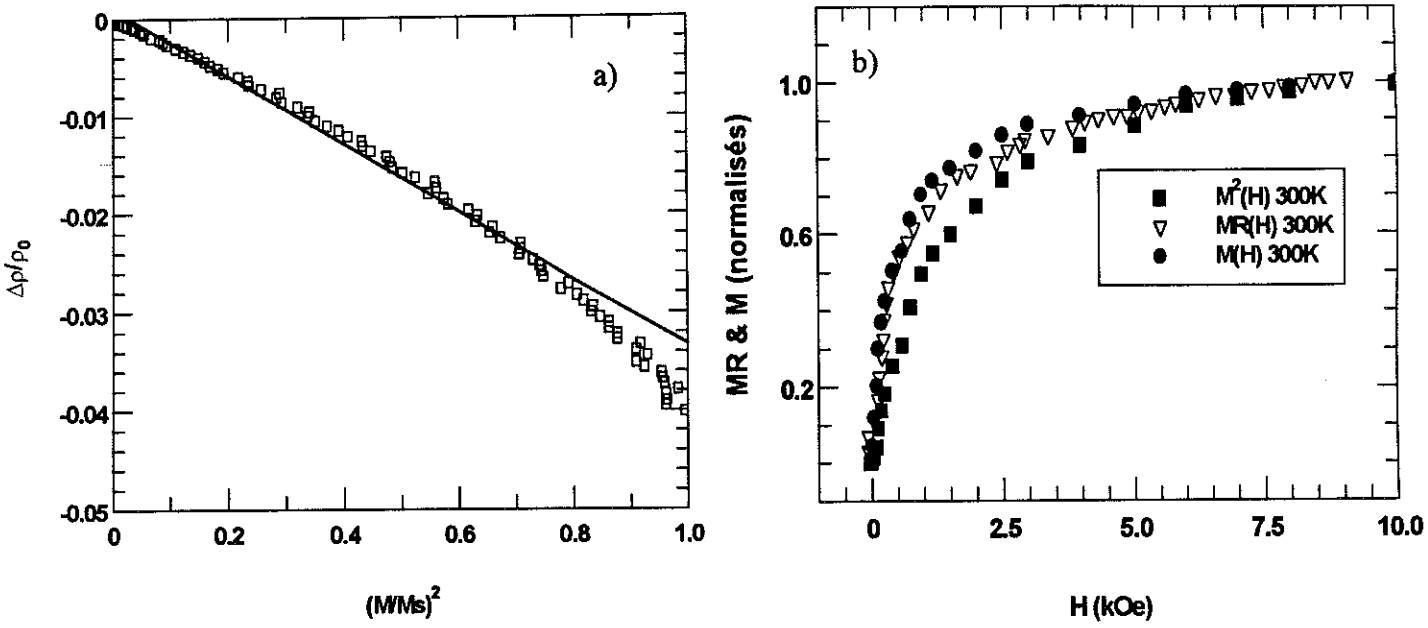


Figure VII.9: Evolution de la MR en fonction du carré de l'aimantation normalisée à 300K pour un alliage dilué en FeNi (a). Comparaison des variations de M(H) et MR(H) pour un échantillon $Ag_{64}FeCo_{36}$ recuit à 700K.

Au dessous de la température de blocage S.O.Musa[10] a observé que la MR ne variait plus comme le carré mais linéairement avec l'aimantation. Il explique cette différence par la distribution des tailles de particules qui permet la coexistence de particules bloquées (les plus grosses) et de particules superparamagnétiques. Les particules bloquées qui s'orientent rapidement dans le champ sont responsables de la forte susceptibilité initiale de l'aimantation que l'on retrouve aussi dans les mesures de transport au dessous de T_B, alors que les plus petites contribuent à la lente saturation. On peut aussi justifier cette forme du fait de la rupture de symétrie due au champ local non nul. La figure VII.9 b) présente une comparaison des variations de la MR et de l'aimantation en fonction du champ magnétique pour un échantillon concentré en FeCo. Elle confirme l'observation de Musa puisqu'on voit clairement que la MR

est proportionnelle à l'aimantation et non plus au carré de celle-ci du fait de la forte susceptibilité initiale. Plus physiquement la relation (2) devrait rester valable si l'on introduit une distribution de champs locaux pour représenter l'échange entre particules. Malheureusement un tel traitement est impossible car le nombre de paramètres d'ajustement devient alors trop important pour tirer des conclusions raisonnables. Nous utiliserons donc la relation de Musa qui est certes phénomènologique, mais qui représente plus fidèlement le comportement expérimental qu'une loi carrée.

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \alpha \left| \frac{\int_0^\infty v.f(v)L\left(\frac{M_s vH}{k_B T}\right)dv}{\int_0^\infty v.f(v)dv} \right| \qquad (3)$$

II.B. Application des modèles pour la détermination des tailles de grains

• Domaine superparamagnétique

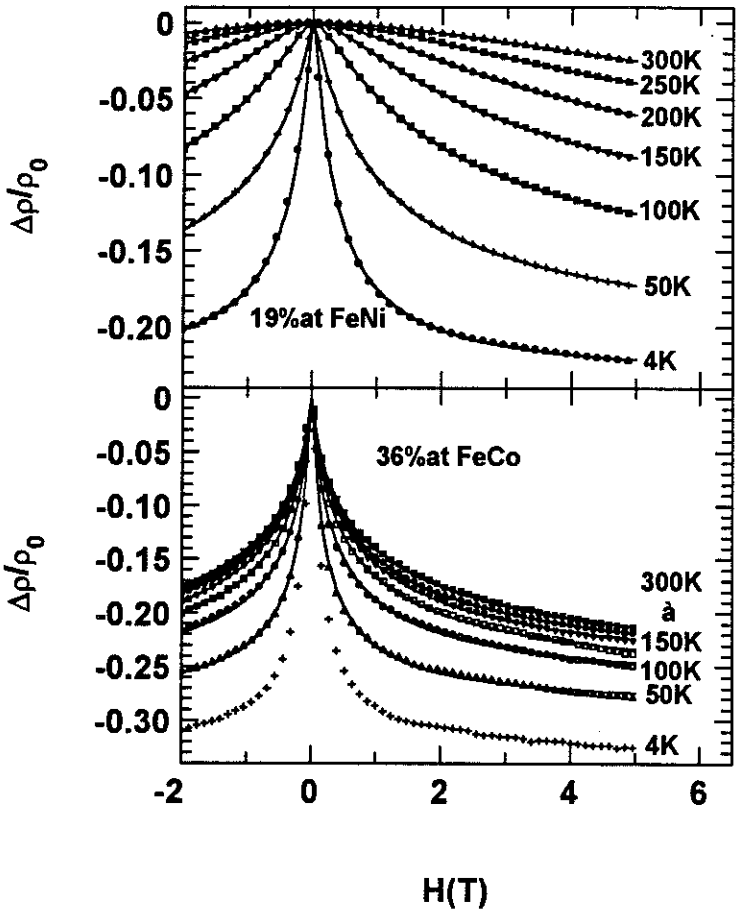


Figure VII.10: Ajustement des courbes de transport par les deux modèles décrits précédemment. Les courbes continues sont des ajustements avec l'éq (2) pour l'alliage de FeNi et avec l'éq (3) pour l'alliage de FeCo.

Pour prouver la validité de ces modèles nous présentons simplement un ajustement pour chacun des deux systèmes considérés (fig VII.10). Le système faiblement concentré en FeNi a été ajusté avec l'éq (2) avec une distribution unique des tailles de grains sur toute la gamme de températures; le système concentré en FeCo a été ajusté grâce à l'éq (3) puisque dans ce cas on se situe au dessous de T_B. Le bon accord entre les modèles et les points expérimentaux est confirmé par les très faibles résidus relevés lors des ajustements. Notons toutefois qu'il a été impossible d'ajuster la courbe à 4K dans le système à base de FeCo ce qui indique que l'éq (3) ne peut s'appliquer au domaine des anisotropies aléatoires. Toutes les particules étant bloquées la dépendance entre la MR et l'aimantation doit suivre encore une loi différente...

Pour pousser un peu plus loin le modèle de l'éq (2) nous avons demandé une mesure à très fort champ sur l'échantillon de FeNi pour voir si les paramètres restaient constants sur une caractéristique plus étendue. Je remercie **Bertrand Raquet** du Service National des Champs Pulsés de Toulouse de nous avoir accordé un peu de son temps pour cette mesure. La figure VII.11 montre que le modèle reste tout à fait valable avec une variation des paramètres d'ajustement inférieure à 5%.

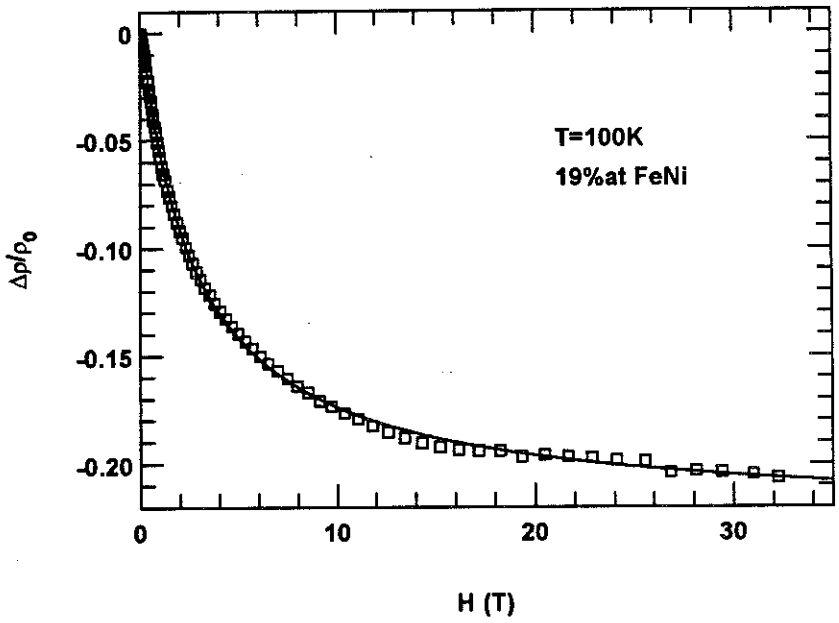


Figure VII.11: Mesure de transport à 100K dans une bobine à champ pulsé et ajustement avec l'éq (2).

Passons maintenant aux données importantes de ces ajustements, à savoir l'évolution des distributions et des tailles moyennes pour faire le lien avec les données structurales du chapitre précédent. Dans le domaine superparamagnétique nous avons besoin d'un paramètre supplémentaire pour décrire l'aimantation qui ne figure pas dans l'éq (2): c'est la température moyenne d'interaction θ entre particules (qui caractérise le comportement de type Curie-

Weiss). Pour l'introduire nous allons remonter à l'inverse de la susceptibilité. Pour un système paramagnétique conventionnel la susceptibilté s'écrit:

$$\chi = \frac{N\mu^2}{3k_B(T-\theta)} \tag{4}$$

on a donc $1/\chi$ qui varie linéairement avec T. En faisant un développement de la fonction de Langevin dans les petits champs on peut écrire que la susceptibilité d'un grain isolé prend la forme:

$$\chi = \frac{VM_s^2}{3k_BT} \tag{5}$$

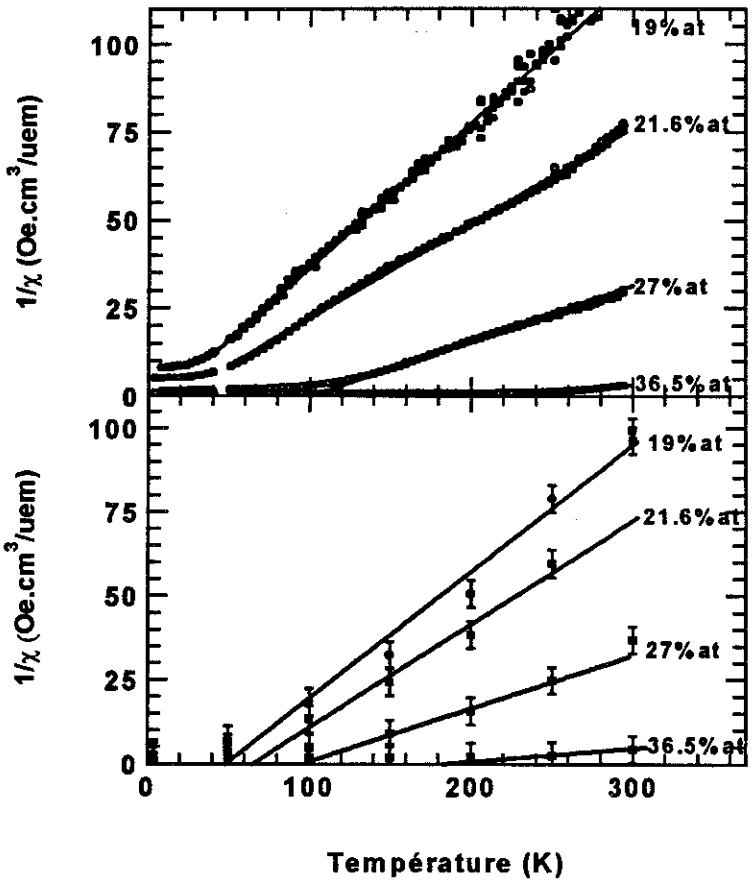


Figure VII.12: Courbes $1/\chi$ mesurées expérimentalement (SQUID) (haut) et déduites du modèle (bas). Les courbes continues sont des ajustements avec l'éq (5).

En extrayant la susceptibilité de nos ajustements et en remplaçant V par le volume moyen $\overline{V}$ déterminé par les ajustements à chaque température, on pourra déterminer le diamètre moyen réel des particules en ajustant $1/\chi$ par:

$$\frac{1}{\chi} = \frac{3k_B(T-\theta)}{M_s^2 \frac{\pi}{6}\overline{D}^3} \qquad (6)$$

La figure VII.12 compare les $1/\chi$ déduits des ajustements et mesurés dans la série d'alliages de FeNi. On observe une très bonne corrélation entre les deux types de mesure, que ce soit au niveau de l'amplitude ou des températures d'interactions.

L'ajustement des $1/\chi$ à l'aide de l'éq (6) permet de remonter aux diamètres moyens et aux températures moyennes d'interaction. Le tableau VII.1 rassemble tous ces paramètres pour la série d'alliages de FeNi. La comparaison des tailles moyennes de grains déduites des ajustements et des mesures de susceptibilité montre clairement la validité du modèle, les écarts sont très faibles et souvent inférieurs à l'Angström. Les valeurs sont aussi tout à fait comparables avec celles des RX, ce qui renforce encore notre crédibilité. Au niveau des températures d'interactions on observe des écarts plus importants surtout aux faibles concentrations. Sur ce point nous n'avons pas réellement d'explication, puisque l'écart n'est pas systématique en fonction de la concentration.

Conc FeNi (%at)	$\overline{D}_{mod}$ (Å)	θ_{mod} (K)	$\overline{D}_{1/\chi}$ (Å)	$\theta_{1/\chi}$ (K)	$\overline{D}_{RX}$ (Å)
19	14.2	48.3	13.8	11.1	15
20.75	14.5	51.7			16.9
21.6	15.2	64.9	15.84	17.7	16.1
25	18.5	68.7			15.7
27	19	95.3	18.94	100.8	20.9
31	19.6	127			22.2
33.4	20.6	154.7			25
36.5	29	250	28.59	229.7	29.2

Tableau VII.1: Paramètres microscopiques de la contribution superparamagnétique. les indices mod, $1/\chi$ et RX font référence respectivement au modèle, à la mesure de susceptibilité et à la mesure aux RX.

Pour la comparaison les ajustements sur les alliages de FeCo déposés à 300K sans rotation, donnent un diamètre moyen de particule de 20Å au moment où le blocage atteint 300K (30%at de FeCo). Cette valeur est bien inférieure aux 30Å des particules de FeNi à 38%at ce qui confirme l'analyse que nous donnions précédemment en interprétant les courbes de transport.

• Domaine du blocage.

Lorsqu'on passe au dessous de la température de blocage, le modèle de Musa permet de bons ajustements avec une continuité des valeurs des paramètres $(\overline{D},\sigma)$. Ce modèle a

cependant un domaine de validité assez restreint puisqu'il devient inefficace au dessous de T_G ou lorsque les interactions ferromagnétiques deviennent importantes. Ainsi dans la série à base de FeNi, les ajustements pour des concentrations assez élevées, bien que qualitativement corrects, donnent une évolution des tailles de particules physiquement inexplicable puisqu'on observe une diminution de la taille moyenne. Il semble que lorsque les interactions sont fortement ferromagnétiques il devient necessaire d'introduire une distribution de champs d'échange entre les particules. Le problème est alors insoluble à cause du trop grand nombre de paramètres à traiter. Pour les alliages à base de FeCo déposés en rotation nous avons vu que les interactions étaient ferromagnétiques via la matrice magnétique, cependant les interactions sont faiblement ferromagnétiques ou du moins à courte portée sinon on n'observerait pas de si grandes amplitudes de MR à 300K. Le modèle de Musa appliqué à l'échantillon d'alliage de FeCo de la figure VII.10 donne alors des résultats très satisfaisants. On détermine une taille moyenne de particules de 20Å qui reste constante jusqu'à 100K. Au dessous on entre dans la zone de gel, où les paramètres divergent rapidement. Cette taille moyenne de 20Å est deux fois plus élevée que celle relevée en RX ou par microscopie, mais s'explique relativement bien: en effet, la taille des particules qui entre dans le modèle est celle de la particule magnétique et non de la particule physique; s'il existe des interactions ferromagnétiques à courte portée, la taille que l'on détermine correspond à la longueur caractéristique des corrélations spatiales. Les 20Å correspondent donc à la taille réelle de la particule plus le volume de matrice magnétique polarisé.

• Effet du traitement thermique

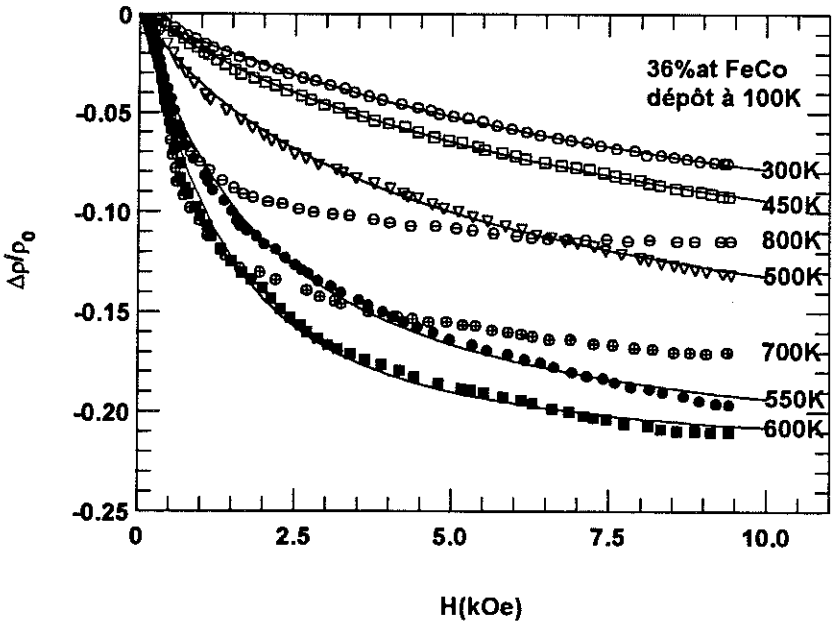


Figure VII.13: Evolution des propriétés de transport à 300K après traitements thermiques (indiqués à droite). Les courbes continues ont été obtenues avec l'éq (3).

Après traitement thermique la matrice n'étant plus magnétique les tailles de particules seront plus facilement comparables aux mesures structurales. La figure VII.13 rassemble des mesures de transport effectuées sur un échantillon avec 36%at de CoFe ayant subi différents traitements thermiques. Nous avons ajusté ces courbes à l'aide de l'équation (3) pour remonter à la taille des particules (courbes continues).

L'amplitude de MR jusqu'à 600K augmente rapidement car les grains en grossissant s'éloignent ce qui réduit les interactions ferromagnétiques, et surtout la résiduelle chute rapidement avec la diminution de la densité de défauts. Au dessus de 600K il n'existe quasiment plus de particules de petite taille comme le montre la nette amélioration de la saturation, mais uniquement des grosses particules qui sont de plus en plus éloignées ce qui réduit le rapport (densité) / lpm et la MR. Dans ce régime où toutes les particules sont bloquées le modèle de Musa ne s'applique plus. Le tableau VII.2 présente les paramètres déduits des ajustements. On note une évolution constante de la taille des particules et un resserrement de la distribution surtout notable au dessus de 500K. Cette réduction de la largeur de distribution est cohérente avec l'affinement des pics de diffraction du FeCo après traitements thermiques et avec la disparition des plus petites entités. Au niveau des tailles de particules, il est difficile d'avoir des points de comparaison précis car nous avons seulement des mesures structurales d'échantillons bruts de dépôt ou recuits à 700K. Cependant les tailles que l'on déduit des ajustements après traitement thermique à 600K se situent dans la bonne fourchette de tailles puisque les images MET donnent une distribution entre 20 et 60Å après recuit à 700K.

Température recuit (K)	$\overline{D}$ (Å)	$\sigma_{distribution}$
300	**19.48**	**0.33**
450	**21.34**	**0.33**
500	**25.27**	**0.37**
550	**34.89**	**0.26**
600	**40.15**	**0.15**

Tableau VII.2: Paramètres d'ajustement de la figure VII.13.

II.C. Définition de la taille optimale et comparaison avec la théorie.

L'étape suivante consiste à rechercher la taille de particule optimale pour l'observation de la plus forte amplitude de MR au moment du blocage. Comme on l'a vu au début du chapitre la résistivité a une très faible dépendance thermique jusqu'au moment du blocage, on peut donc comparer des amplitudes mesurées à T_B quelque soit sa valeur. La figure VII.14 trace les valeurs de $\Delta\rho/\rho_0$ prise à T_B en fonction du diamètre des grains déduit des ajustements. Cette MRDS prise à T_B montre un maximum pour un diamètre moyen de particules d'environ 15Å,

qui doit correspondre au meilleur compromis (densité de particule) / lpm dans le FeNi. Au delà l'amplitude décroit comme l'inverse de la taille moyenne.

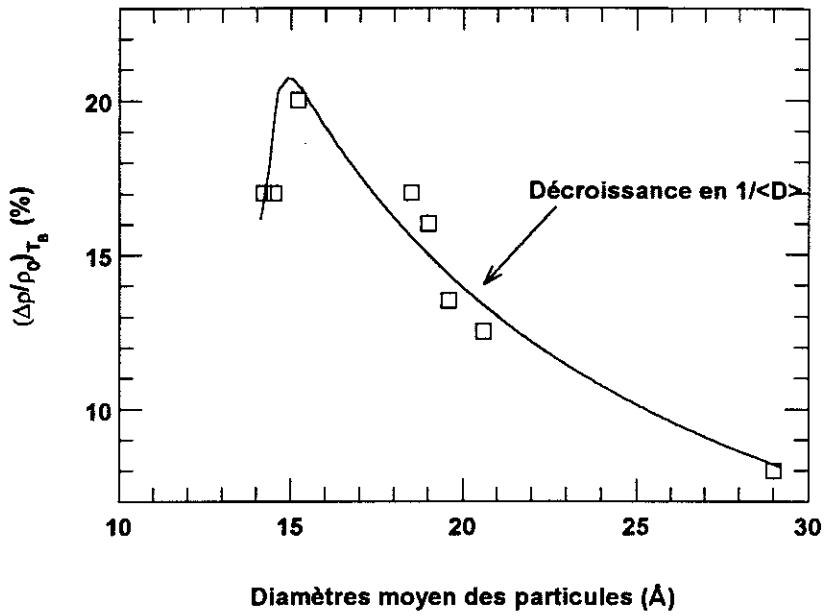


Figure VII.14: Dépendance de l'amplitude de MR à T_B selon le diamètre moyen des particules de FeNi déduit des ajustements.

Quelques théoriciens ont tenté de modéliser cette dépendance en adaptant le formalisme utilisé dans les multicouches: Ils considèrent tous que le principal mécanisme responsable de la MR est lié aux diffusions électroniques dépendantes ou non du spin aux interfaces et dans le volume des particules, mais divergent sur la façon de modéliser les systèmes granulaires. Levy[11] utilise le formalisme de GMR CPP (Courant Perpendiculaire au Plan) car il considère que les alliages granulaires sont « auto-moyennés » i.e. la résistivité globale est la moyenne de la somme des diffusions qui s'opérent dans l'ensemble des particules. Dans ce formalisme la MR est indépendante des effets de taille des particules donc du rapport $\overline{D}$/ lpm, tout comme la GMR CPP était indépendante du rapport (épaisseur des couches) / lpm. Vedyayev[12] considère pour sa part que les systèmes granulaires étant un mélange des configurations CIP et CPP, on doit retrouver des effets de taille de particules. Son modèle utilise donc le formalisme de Kubo en calculant la conductivité non locale.

Levy montre que la dépendance de la MR avec la taille des particules ne présente pas de maximum si on considère une taille unique de particule; par contre il obtient un extremum autour de $\overline{D}$=20Å en considérant une distribution uniforme des tailles de grains. Dans son modèle il observe une prédominance de la diffusion dépendante du spin aux interfaces qui explique la décroissance de la MR en $1/\overline{D}$ lorsqu'on augmente la taille des particules. Vedyayev obtient un résultat tout à fait similaire avec $\overline{D}$=15Å mais pour une diffusion dépendante du spin prédominante dans le volume des particules! Il ajoute que lorsque la diffusion dépendante du spin aux interfaces prédomine on n'observe plus d'extremum... Dans

son cas la décroissance de la MR vers les grandes tailles est une conséquence de l'effet de taille, on n'optimise plus le rapport (densité) / lpm; en effet si les grains sont trop gros le nombre de grains traversé sur le lpm diminue. La décroissance varie donc aussi comme $1/\overline{D}$... Ces deux modèles, malgré leurs différences donnent des résultats assez comparables et tous deux en accord avec les observations expérimentales. Cependant ils considèrent tous deux les variations de tailles de particules pour une concentration constante, ce qu'il n'est pas possible de réaliser expérimentalement. En effet la taille et la concentration sont intimement liés dans notre mode de dépôt. La figure VII.14 n'est donc pas donnée à concentration constante, elle varie entre 20 et 40%at. Ces variations de concentration n'entrent pas dans les modèles bien qu'elles aient un effet non négligeable sur les effets de taille décrits par Vedyayev.

III. AMELIORATION DES PROPRIETES PAR TRAITEMENTS THERMIQUES.

Le caractère très métastable des alliages bruts de dépôt est favorable à de profondes modifications structurales lors des traitements thermiques et ce dès les faibles températures de recuit.

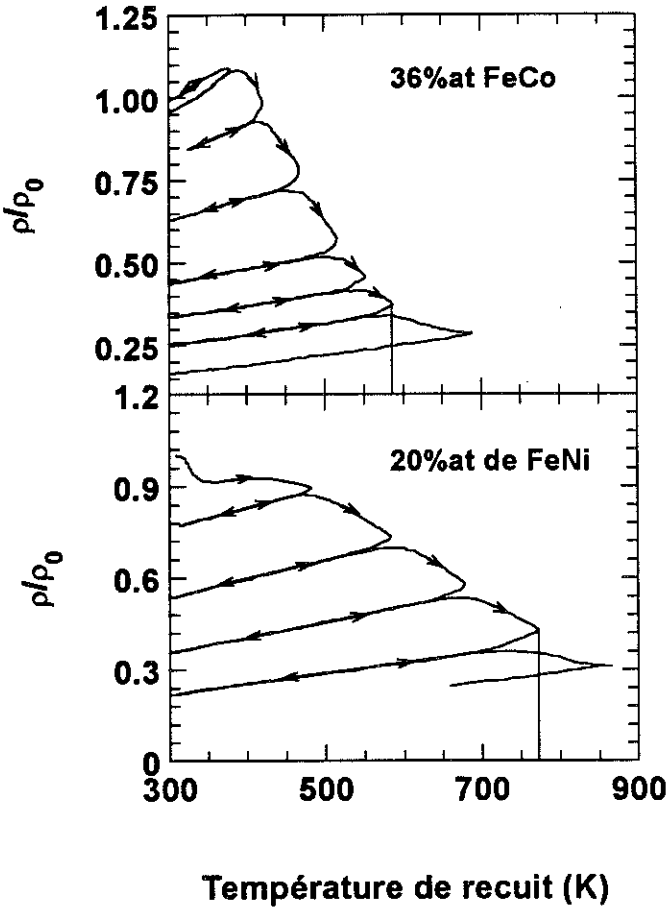


Figure VII.15: Evolution de la résistivité des alliages en fonction de la température de recuit.

La structure des couches s'améliore sensiblement grâce à une démixtion des phases magnétiques et non magnétiques, un grossissement des grains et une réduction de la densité de défauts. Toutes ces modifications vont avoir de fortes répercussions sur la résistivité résiduelle des couches. La figure précédente trace les variations de la résistivité renormalisée à la valeur après dépôt en fonction de la température de recuit pour deux alliages de FeCo et FeNi. On constate une nette différence entre les deux alliages. En effet l'évolution structurale dans l'alliage de FeCo est rapide puisqu'elle est presque terminée après un recuit à 600K et surtout très importante à en juger par la forte réduction de la résistivité résiduelle (≅facteur 5). Le gain d'amplitude de MR risque donc d'être important. Pour l'alliage de FeNi la résistivité est tout de même divisée par 4 mais pour une température de recuit plus importante (≅770K). Cette différence de rapidité d'évolution pourrait être le signe d'une plus forte immiscibilté du FeCo dans l'Ag.

III.A. Amélioration de l'amplitude de GMR.

Les modifications structurales induites par le traitement thermique ont des conséquences très différentes sur les échantillons selon leur concentration qui définit la température de blocage.

cas 1: $T_B < 300K$

Le recuit en faisant grossir les grains et en provoquant la ségrégation des phases magnétiques et non magnétiques permet une augmentation du T_C et de T_B, la résistivité magnétique devient de plus en plus importante au fur et à mesure que T_B se rapproche de l'ambiante. Dans les échantillons faiblement concentrés l'amplitude de MR augmente d'autant plus rapidement que la résiduelle diminue aussi.

cas 2: $T_B > 300K$.

Dans ce cas l'évolution de ρ_m dépend du type d'interactions dominant:

-Si les interactions sont ferromagnétiques (cas des alliages de FeNi), le grossissement des grains va les éloigner et donc réduire l'intensité des interactions; ρ_m va donc à nouveau augmenter par contre le rapport (densité) / lpm va décroître et jouer en sens inverse sur ρ_m. En fait le paramètre le plus pertinent reste la réduction de ρ_0 qui permet un gain important d'amplitude de MR.

-Si les interactions sont globalement nulles (cas des alliages de FeCo), l'éloignement des grains fait tout de suite chuter le rapport densité / lpm et par conséquent ρ_m. Cependant la chute du ρ_0 étant très forte dans ces alliages, elle compense largement l'effet d'éloignement et permet un fort gain d'amplitude.

En résumé l'amplitude de MR est surtout liée à la diminution de la résistivité résiduelle dans les alliages concentrés. Dans les autres, les effets d'augmentation de ρ_m et de baisse de ρ_0 s'additionnent pour augmenter l'amplitude. La figure VII.16 montre les évolutions de la MR dans deux alliages faiblement concentrés de FeNi.

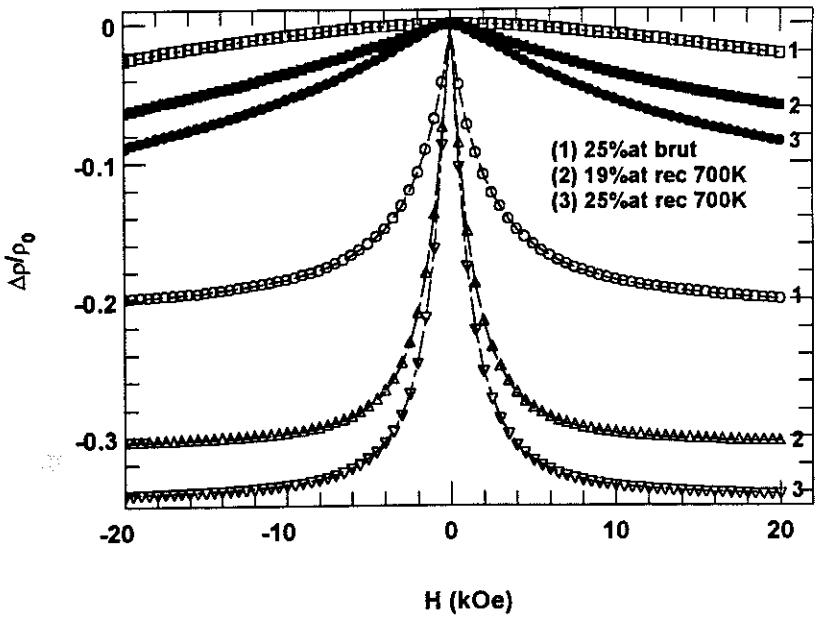


Figure VII.15: Evolution de l'amplitude de MR dans deux alliages de FeNi après recuit à 700K. Les courbes (1) montre deux caractéristiques d'un échantillon non recuit. Les 3 courbes du haut sont mesurées à 300K et celles du bas à 4K.

Dans ces échantillons faiblement concentrés le gain d'amplitude au dessus de T_B est très important puisque après un recuit à 700K la MR est multipliée par 4. Cependant dans ces échantillons le blocage n'atteint pas encore 300K, comme l'indique la susceptibilité en champ faible, l'amplitude n'est donc pas maximale. Pour un échantillon avec 30%at de FeNi recuit à 700K les grains ont atteint une taille suffisante (≅35Å) pour que T_B atteigne 300K, on atteint alors 12% de MR dans 20kOe. En comparaison dans les alliages de FeCo faiblement concentrés on atteint 20% dans 20kOe grâce à la plus petite taille des particules. A basse température au dessous de T_B la chute de la résiduelle permet d'atteindre les plus fortes amplitudes dans les systèmes les plus dilués car les grains étant petits, leur nombre est très important et le lpm très long. Ainsi on dépasse les 30% à 4K pour 25% de FeNi recuit à 700K et 48% pour 28% de FeCo recuit à 600K. Cette dernière valeur renormée en $\Delta\rho/\rho_s$ donne près de 100% ce qui constitue une des plus fortes valeurs enregistrée dans les systèmes granulaires. En résumé les faibles concentrations permettent d'obtenir les plus fortes amplitudes à basse température mais sont inexploitable à 300K car la contribution superparamagnétique est bien trop forte.

III.B. Réduction des champs de saturation.

Si la priorité n'est plus portée sur l'optimisation de l'amplitude de MR mais sur les champs de saturation, on peut trouver des systèmes dont les caractéristiques sont comparables à certaines multicouches même à température ambiante.

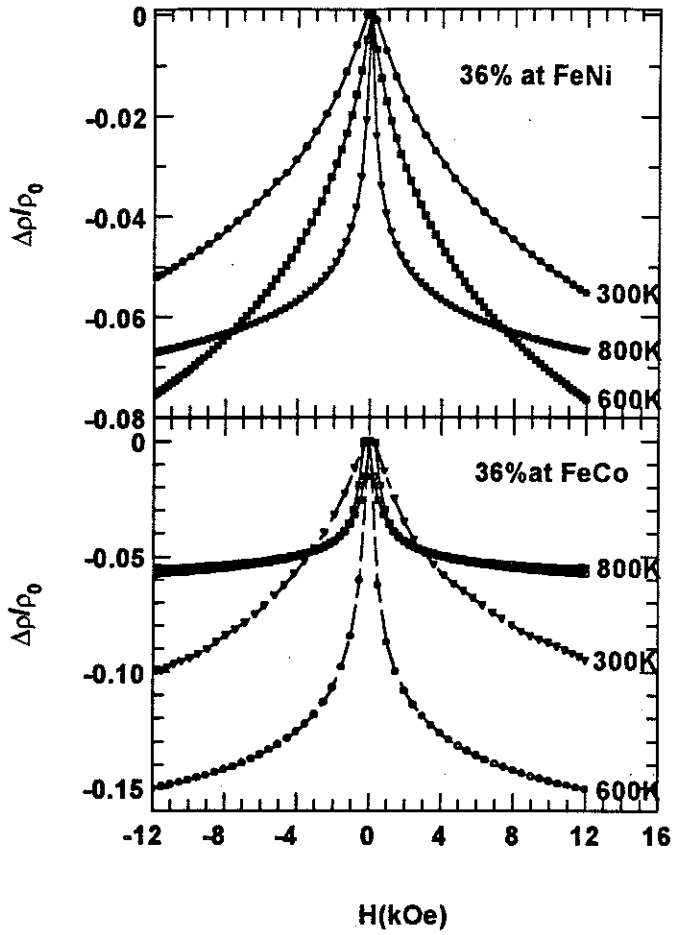


Figure VII.16: Evolution des caractéristiques de transport à 300K dans deux alliages concentrés de FeNi et FeCo recuits à différentes températures.

En considérant des échantillons concentrés dont la température de blocage est située au dessus de l'ambiante, le traitement thermique améliore alors considérablement les caractéristiques de transport mesurées à 300K. Les alliages de FeNi évoluant plus lentement que ceux de FeCo, la saturation des couches est difficile à obtenir même après un traitement thermique à 800K (cf fig VII.16). En outre l'amplitude de MR reste assez limitée en champs faibles (≅7% dans 12kOe). Les alliages FeCo sont par contre de bons candidats pour des applications de capteurs électrotechniques car après un recuit à 800K on obtient une caractéristique bien saturée grâce à l'élimination des plus petits grains tout en maintenant une amplitude raisonnable. La figure VII.17 reprend la courbe de l'échantillon de FeCo recuit à 800K en unité de MR utilisée pour les multicouches. Avec 4.5%/kOe cet alliage se place juste derrière le système granulaire bicouche de FeNi et Cu de Coffey et al[13], mais il montre surtout qu'il est tout à fait possible d'utiliser des couches granulaires pour des applications. Pour un recuit à 600K la caractéristique est un peu moins bien saturée mais la sensibilité est maximale, ce qui permet d'atteindre une sensibilité remarquable pour un alliage granulaire de 10%/kOe!. Notons toutefois l'apparition d'un hystérésis liée sûrement à une structure en domaines dans les grains de grande taille.

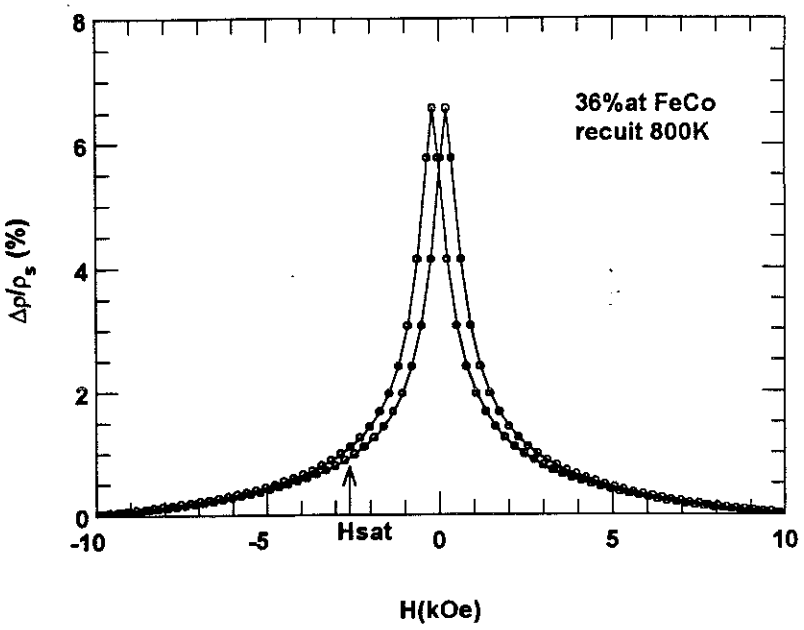


Figure VII.17: GMR à 300K dans un alliage avec 36%at de FeCo recuit à 800K.

CONCLUSION

Les systèmes granulaires se sont révélés riches au niveau des propriétés de transport puisque nous avons pu mettre en évidence pas moins de 4 types de magnéto-résistance:
-La magnéto-résistance de désordre de spin ou **MRDS** dans les échantillons superparamagnétiques.
-Les magnéto-résistances associées aux particules en interactions (**MRPI**) ou gelées par l'anisotropie (**MRPG**).
-L'Anisotropie de la magnéto-résistance (**AMR**) dans les couches de FeNi concentrées causée par le comportement ferromagnétique des couches.

Dans les régimes de MRDS et MRPI nous avons réussi à corréler le transport aux propriétés structurales grâce à deux modèles de distribution de fonctions de Langevin qui se différencient par la corrélation entre la MR et l'aimantation: elle est quadratique dans le régime superparamagnétique et linéaire dans le cas d'un mélange de particules bloquées en interactions nulles ou faibles et de particules encore superparamagnétiques. Les ajustements de nos systèmes de FeNi et FeCo ont donné des résultats satisfaisants puisque les tailles de grains que nous avons pu extraire sont cohérentes avec les observations de microscopie et les dépouillement des RX.
D'un point de vue plus fondamental nous avons corrélé l'amplitude maximale de MR mesurée à T_B à la taille des particules, pour tester les modèles théoriques de Levy et Vedyayev. Les deux théories prévoient le bon ordre de grandeur de taille pour le maximum observé bien que les conclusions différent sensiblement. Compte tenu des simplifications considérées dans

chacune des théorie surtout au niveau des distributions de taille, il nous est impossible de privilégier l'une ou l'autre.

Enfin l'étude des traitements thermiques nous a permis de mettre à jour le potentiel technologique des alliages à base de FeCo. En effet ces systèmes faciles à préparer et à optimiser se révèlent des candidats très sérieux pour les multicouches dans le domaine des applications électrotechniques moins exigentes sur la sensibilité. D'autres méthodes de préparation encore plus souples que la pulvérisation cathodique telle que la trempe sur roue devraient donner des résultats similaires, ce qui lancerait réellement le développement industriel de capteurs de champ granulaires.

BIBLIOGRAPHIE

[1] P.G.de Gennes, J.Friedel, J.Phys.Chem.Solids, **4**, (1958), 71
[2] J.R.Childress, C.L.Chien, Phys.Rev.B, Vol **43**, N°10, (1991), 8089
[3] F.Conde, C.Gomez-Polo, A.Hernando, J.Magn.Magn.Mater., **138**, (1994), 123
J.A.Barnard, S.Hossain, M.R.Parker, A.Waknis, M.L.Watson, J.Appl.Phys., **73**, (1993), 6372
J.C.Lodder, P.de Haan, H.van Kranenburg, J.Magn.Magn.Mater., **128**, (1993), 219
[4] G.Xiao, J.Q.Wang, P.Xiong, Appl.Phys.Lett., **62**, (1993), 420
A.Maeda, M.Kume, S.Oikawa, T.Tanuma, Y.Shimizu, M.Doi, J.Phys.: Condens.Matter, **5**, (1993), 6745
[5] A.E.Berkowitz, J.R.Mitchell, M.J.Carey, A.P.Young, D.Rao, A.Starr, S.Zhang, F.E.Spada, F.T.Parker, A.Hutten, G.Thomas, J.Appl.Phys., **73**, (1993), 5320
[6] M.R.Parker, J.A.Barnard, D.Seale, A.Waknis, J.Appl.Phys, **73**, (1993), 5512
[7] S.H.Mahmood, J.Mgn.Magn.Mater, **118**, (1993), 359
[8] R.W.Chantrell, J.Popplewell, S.W.Charles, IEEE Trans Magn., **14**, (1978), 975
[9] J.I.Gittleman, Y.Goldstein, S.Bozowski, Phys.Rev.B, **5**, (1972), 3609
J.Q.Xiao, J.S.Jiang, C.L.Chien, Phys.Rev.Lett., **68**, (1992), 3749
C.Bellouard, B.George, G.Marchal, J.Phys.: Condens.Matter, **6**, (1994), 7239
[10] S.O.Musa, M.A.Howson, B.J.Hickley, N.Wiser, J.Magn.Magn.Mater., **148**, (1994), 309
[11] S.Zhang, P.M.Levy, J.Appl.Phys., 73, (1993), 5315
[12] A.Vedyayev, B.Mevel, N.Ryzhanova, M.Tshiev, B.Dieny, F.Brouers, à paraître
[13] K.R.Coffey, T.L.Hylton, M.A.Parker, J.K.Howard, Appl.Phys.Lett., **63**, (1993), 1579

CONCLUSION GENERALE

Dans ce mémoire nous avons présenté une analyse assez complète des propriétés structurales, magnétiques et de transport des systèmes multicouches Ag/FeNi et Ag/FeCo et de leurs équivalents en alliages granulaires. Nous avons essayé dans chaque cas, par delà l'analyse purement quantitative de la magnétorésistance, de corréler les propriétés magnétiques et structurales afin de déterminer les paramètres pertinents pour des applications potentielles.

• Systèmes multicouches

Les choix du FeNi et du FeCo ont été motivés par la formule définissant la sensibilité dans les systèmes multicouches. Dans le cas du FeCo les paramètres d'aimantation et de rapport de densités de spin étaient optimisés, mais la forte diffusion interfaciale en affectant profondément les valeurs de l'épaisseur de la couche magnétique optimale et du couplage inter-couche a ruiné tout espoir d'une forte sensibilité. Le FeNi au contraire, malgré une aimantation un peu réduite s'est avéré un choix judicieux pour l'optimisation de la sensibilité grâce une diffusion volumique prédominante.

Au niveau structural, les multicouches préparées par pulvérisation cathodique ont montré une croissance classique fortement texturée <111> correspondant à la direction dense des matériaux cfc. Les épaisseurs des couches d'Ag et des matériaux magnétiques ont été mesurées par RX aux grands angles après avoir déterminé par une méthode de double période les valeurs réelles des distances inter-planaires dans les couches minces (écarts de 1 à 2% par rapport au matériau massif).

D'un point de vue quantitatif, nous avons obtenu des résultats très satisfaisants pour le système Ag(12.4Å)/FeNi(26Å) brut de dépôt avec une sensibilité de 0.16%/Oe, ce qui constitue une des plus fortes valeurs des systèmes multicouches préparés par pulvérisation cathodique. D'autre part les traitements thermiques ont montré une bonne tenue thermique de la structure multicouche jusqu'à 280°C avec une sensibilité qui se maintenait à 0.13%/Oe pour le système Ag(11.72Å)/FeNi(26Å).

Une analyse un peu plus qualitative des caractéristiques magnétiques a rapidement mis en relief quelques anomalies inexplicables par un modèle à un seul terme de couplage: apparition d'une aimantation rémanente dépendante de l'épaisseur de la couche d'Ag, réduction de la période

d'oscillation de J, réduction du plateau de GMR à basse température ou encore variations de la forme des caractéristiques de transport selon l'épaisseur de couche non magnétique.
Nous avons pu interpréter toutes ces anomalies en introduisant un terme de couplage supplémentaire dit biquadratique qui trouve ses origines dans les défauts structuraux. Ce terme qui favorise un alignement orthogonal des aimantations est responsable de l'aimantation rémanente et de l'inversion de la courbure des caractéristiques de transport lorsqu'il domine J.

Aux faibles épaisseurs d'Ag (<10Å) le terme biquadratique est semble-t-il associé à la présence de ponts ferromagnétiques reliant les couches magnétiques. En effet grâce à un modèle développé par J.F.Bobo nous avons pu simuler correctement les comportements magnétiques dans ce domaine d'épaisseur. De plus, les corrections apportées par ce modèle sur l'intensité de J ont permis de retrouver la période d'oscillation prédite théoriquement par Bruno.

Aux fortes épaisseurs le terme biquadratique a deux origines possibles:
- La présence d'impuretés magnétiques isolées au sein de la couche non magnétique comme suggéré par Slonczewski.
- L'existence d'une structure en domaines à anisotropie aléatoire dans chaque couche magnétique qui s'oppose à un alignement colinéaire des aimantations entre couches.
Le premier modèle éprouvé sur des systèmes épitaxiés de Fe/Au semble s'adapter correctement à notre cas de figure puisqu'il ajuste très fidèlement la loi de dépendance thermique que nous avons mis en évidence expérimentalement et vérifie les critères d'amplitude et de déphasage observés. La forte dépendance thermique de B comparée à J est par ailleurs responsable de la réduction du plateau de GMR aux basses températures vers les fortes épaisseurs, car elle permet à B de dominer J et de refermer l'angle entre aimantations (d'où la réduction d'amplitude de GMR).
Le second modèle est plus spéculatif car nous n'avons aucune évidence expérimentale permettant de l'étayer. Néanmoins on admet généralement que lorsque le couplage inter-couche disparait (pour une grande épaisseur de couche non magnétique) une structure désordonnée entre couches magnétiques peut être responsable d'une faible GMR. Pourquoi cette image ne resterait-elle pas valable lorsque J se rapproche d'un noeud de l'oscillation?

Pour tester un peu plus ces diverses origines de B, il serait bon d'étoffer l'étude structurale par des observations en microscopie électronique haute résolution. Nous aurions peut être alors la preuve de l'existence de ponts ou d'impuretés dans la couche non magnétique.

Au niveau des applications, nous avons pu définir un procédé d'optimisation de la sensibilité des systèmes multicouches en jouant sur les valeurs de J et B. En effet le terme B qui est non nul au niveau des zéros de J, permet de maintenir une GMR de l'ordre de 50% de l'amplitude maximale dans un champ de saturation très faible. En jouant sur le mode de dépôt, nous avons pu réduire l'intensité de B soit en réduisant l'anisotropie de la structure en domaines soit en limitant le nombre d'impuretés. Ainsi nous sommes parvenus à augmenter la sensibilité jusqu'à 0.3%/Oe. Malheureusement la fenêtre d'épaisseur d'Ag utilisable pour atteindre cette valeur

est très limitée. Le gradient d'Ag acceptable, sur la surface totale du wafer, pour optimiser le rendement de production devrait donc s'abaisser à 2% contre 40% aujourd'hui!

• Systèmes granulaires

La caractéristique principale des alliages granulaires est la complexité des analyses magnétiques due au caractère statistique de nombreux paramètres (taille de grains, signe et intensité des interactions entre grains, anisotropie de forme des grains...). Néanmoins les analyses magnétiques par résonance ferromagnétique, effet Mössbauer, mesures d'aimantation ou de transport nous ont permis de dégager 4 comportements distincts selon la température de mesure et la topologie des alliages. Il a été possible de délimiter les domaines de température de chaque comportement et ainsi dresser un diagramme de phase magnétique pour le système Ag/FeNi.

Dans les domaines superparamagnétiques et ferromagnétiques à interactions faibles, nous sommes parvenus à ajuster les caractéristiques de transport grâce à deux modèles de distribution de fonctions de Langevin. Les distributions de taille de grains déduites des modèles se sont avérées être très cohérentes avec les mesures structurales de RX ou de microscopie électronique à haute résolution. D'autre part, les valeurs des interactions moyennes entre grains dans le domaine superparamagnétique déduites du modèle sont elles aussi cohérentes avec celles tirées des mesures de susceptibilité.

Au niveau des applications, nous avons montré qu'il était bien plus intéressant d'utiliser des matériaux à forte anisotropie magnétocristalline comme le Co ou le FeCo pour permettre un blocage des aimantations pour un plus faible volume de grains. De plus cette faible taille de grain permet d'augmenter de façon importante le rapport (densité de particules) / (libre parcours moyen) qui détermine l'amplitude de la MR. Après recuit, les tailles moyennes des grains ont augmenté permettant d'éliminer progressivement la contribution superparamagnétique. Ainsi après un recuit à 600K la sensibilité est optimale dans les alliages de FeCo avec 10%/kOe. Pour un recuit plus fort la contribution superparamagnétique disparait totalement mais les grains encore plus gros ne permettent plus d'optimiser le rapport (densité) / lpm; la sensibilité retombe donc à 4.5%/kOe. Ces sensibilités, loin d'atteindre les valeurs des multicouches, sont tout de même suffisantes pour des applications moins exigeantes de type électrotechniques.

RESUME

L'analyse des comportements magnétiques et de transport dans les systèmes multicouches nécessite l'introduction, en sus du couplage bilinéaire, d'un terme de couplage biquadratique, favorisant l'apparition de structures magnétiques non colinéaires. Les implications de ce terme supplémentaire sont très importantes, notamment au niveau des caractéristiques de transport puisqu'il agit sur des critères aussi divers que l'amplitude de GMR, la linéarité ou la tenue thermique. Nous avons pu quantifier son intensité et trouver ses origines, qui sont principalement liées à des imperfections structurales (ponts ferromagnétiques ou impuretés dans la couche non magnétique). Par une étude systématique de couches à gradient d'épaisseur, nous avons pu optimiser la sensibilité de capteurs de champs.

L'étude des systèmes granulaires, formés par co-déposition de matériaux magnétiques et non magnétiques, s'est avérée autrement plus complexe étant donnée la structure fortement désordonnée. Néanmoins nous avons pu mettre en évidence 4 régimes de transport distincts associés aux divers comportements des aimantations dans les grains. Nous avons corrélé les propriétés structurales et de transport dans ces alliages granulaires par un modèle prenant en compte la topologie réelle des grains et les couplages entre clusters. Enfin nous avons pu dégager les paramètres importants pour des applications potentielles dans le domaine de l'electrotechnique.

ABSTRACT

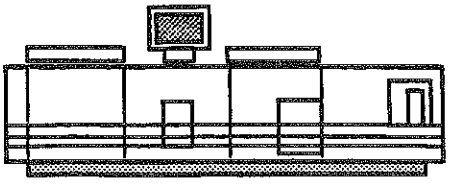
A fine analysis of the magnetic and transport behaviours in multilayered systems requires the introduction, besides bilinear coupling, of a biquadratic coupling, wich favours a non colinear structure of the magnetisations. Strong magnetic modifications occured due to this new contribution, mainly in the transport properties : variations of the GMR amplitude, various shapes or different thermal behaviours. Using appropriate models, we quantified its intensity and found its origins in structural imperfections such as « pin-holes » or magnetic impurities in the non magnetic layers. Furthermore we determined a method to improve the sensitivity, using this biquadratic term, which has been successfully applied to Ag/FeNi GMR heads.

We also carried out a comprehensive study of granular alloys formed of co-deposited magnetic and non magnetic materials. 4 transport contributions were evidenced, that we linked with the various magnetic behaviours observed in magnetic particles. We correlated structural and transport properties in these granular alloys using a simple model including realistic granular topology and couplings between magnetic clusters. At last, we determined the important criteria for electrical applications.

mots-clés :

- Multicouches
- Magnéto-résistance Géante
- Couplages bilinéaires et biquadratiques
- Capteur de champ
- Systèmes granulaires
- Modélisation
- Résistivité
- Aimantation

Grenoble, juin 1996



Imprimé sur "Xerox 5090",
au Service Reprographie du CNRS de Grenoble.