

**UNIVERSITE DE LIMOGES**  
**ECOLE DOCTORALE Sciences – Technologies – Santé**  
**FACULTE DES SCIENCES ET TECHNIQUES**

Thèse N°712009

**Thèse**  
pour obtenir le grade de  
**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LIMOGES**

**Discipline : Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique**  
**Spécialité : Communications Optiques et Microondes**

Présentée et soutenue par

**Kevin Garello**

*Le 8 Décembre 2009*

**Matériaux magnéto-diélectriques en couches minces à  
forte perméabilité et à forte permittivité pour les  
applications microondes**

*Thèse dirigée par Bernard Viala et Dominique Cros*

**Jury :**

**Rapporteurs**

Jean-François Bobo  
Ala Sharaiha

Chargé de Recherche, HDR  
Professeur

CEMES/ONERA, Toulouse  
IETR, Rennes

**Examineurs**

Serge Toutain  
Christian Brosseau  
Bernard Viala  
Dominique Cros  
Nicolas Vukadinovic

Professeur, Président de Jury  
Professeur  
Ingénieur, HDR  
Professeur  
Ingénieur, HDR

IRENA, Université de Nantes  
Labstic, Université de Brest  
CEA/DRT, Grenoble  
XLIM, Université de Limoges  
Dassault Aviation, Saint Cloud

**Invités**

Michel Aubourg  
Luc Lapierre  
Bruno Mortaigne

Chargé de Recherche  
Ingénieur  
Ingénieur

XLIM, Université de Limoges  
CNES, Toulouse  
DGA, Bagneux



*A Pépé Maurice*  
*A Sieur Chevalier Philippe Abarnou*

« *Small is beautiful* »

Kentz, dixit Jamal

«  $2+2=5$ , pour de très grandes valeurs de 2 »

Théorème du physicien, <http://desencyclopedie.wikia.com>



# Remerciements

Je tiens à remercier de nombreuses personnes, j'en oublierai, c'est sûr, mais pour commencer, il me semble évident que tout ce travail n'aurait jamais été accompli sans Bernard Viala, mon merveilleux encadrant au quotidien. Alors MERCI mille fois Bernard, pour tout ce que tu m'as appris, tout ce que tu m'as apporté, tous ces bons moments, ces discussions passionnées (sur le vin bien sûr !!!, mais aussi la politique, l'humanisme et la science). En bref, merci d'avoir été un encadrant plus qu'extraordinaire.

Bien entendu, je remercie la DGA de m'avoir financé durant cette thèse, mon directeur de thèse Dominique Cros et mon deuxième encadrant Nicolas Vukadinovic. Merci également à mon jury de thèse d'avoir accepté la tâche de lire ce manuscrit et aussi d'en avoir apprécié le contenu : Jean François Bobo, Ala Sharaiha, Serge Toutain, Christian Brosseau, Luc Lapiere et Michel Aubourg.

Cette thèse a également été une source de collaborations entre différents laboratoires, au travers du projet CARNOT Radio Opportuniste. Et je tiens à remercier chaleureusement : Christophe Dubarry, Pierre Garrec, Henri Boucher pour le LITEN, François Grange (avec qui nous nous sommes amusés à jouer aux antennes), Christophe Delaveaud, Serge Borries et Ludo pour le DCIS/SMOCC, Damien Rialet pour l'IETR, Valérie Mandregeas, Arnaud Potier, Aurélien pour XLIM.

Ah, et bien sur merci Rachid Hida de m'avoir rendu tant de menus services, Claude Gaillard, Seb et Jean Louis d'avoir sauvé la MP900 à maintes reprises.

Merci aussi à mon premier laboratoire d'accueil, le LIMN qui s'est ensuite joint au LCRF, avec Bertand, Cécile, Julien, Hervé, Olivier Redon, Marc Aïd, Emmanuel Defaÿe et ceux que j'oublie (y'a quand même 60 personnes !).

Mon second laboratoire d'accueil, Spintec, fut également source de nombreuses et formidables rencontres : Marie-Thérèse, aussi appelée Mamie-T, qui m'a tout appris de la salle blanche et de l'art de la bonne humeur, Jérémy Hérault, ses calamars encrés et autres tripailles, Erwan, Guillaume, Mihai « Guiver » l'homme qui arrose ses manipes pour améliorer sa conductivité et à qui je vais devoir obéir en postdoc... argh !, Helga, Daria, Ursula, Cat, Rachele, Stéphane, Gilles, Eric Gautier, Bernard Dieny, Alain Schuhl.

Et spécial MERCI à mes co-bureau qui m'ont supporté malgré mon caractère dissipateur et turbulent : JP, Eve, Michael et Dimi le hamster, chasseur d'écureuils, avec qui j'ai réinventé l'eau tiède, parfois presque bouillante ; ce fut bien amusant... on recommencera, j'en suis sûr.

Les potes de Brest, avec qui j'ai fait mes premiers pas dans la physique : Arnaud, Vince, Chantal, Mat, et mes premiers « mentors » : David Dekadjevi, David Spinato et Jamal Ben Youssef.

Et les potes de Grenoble, qui ont contribué à rendre cette thèse encore plus intéressante à mes yeux : Nico Gast, que je remercie d'abord pour m'avoir présenté sa sœur Séverine (que j'ai quand même mis deux ans à vraiment rencontrer), et aussi pour m'avoir montré que les accidents de montagne, ça arrive ! - on s'en sort, parfois -, et bien sûr mon ptit Olivier Demichel tout vert de terre, et Mathilde bientôt maman, et la bande de jeun's d'au-dessus (Jo & Co) qui a su apprécier mes fondants au chocolat à défaut de mes travaux scientifiques.

Et j'allais oublier mes sempiternels parents qui m'ont quand même bien aidé et soutenu tout au long de la thèse, et aussi avant, et aussi après, et qui méritent par conséquent un énorme MERCI. Et mamie Bernadette qui aime lire les remerciements, surtout quand elle y est... donc il faut aussi que je rajoute papi Claude et mémé Mado...

# Sommaire

<b>Partie Introductive</b>	<b>9</b>
<b>I) Introduction Générale</b>	<b>10</b>
<b>II) Ferromagnétisme pour les hyperfréquences</b>	<b>12</b>
2.1) Zone I : les composants passifs inductifs ( $\mu'$ )	14
2.2) Zone II : les filtres ( $\mu''$ )	14
2.3) Zone III : la perméabilité négative, une zone à exploiter	15
2.4) Une rupture pour le magnétisme hyperfréquence intégré	16
<b>III) Ferroélectricité pour les hyperfréquences</b>	<b>17</b>
3.1) Les capacités	17
3.2) Les transistors	18
3.3) Filtres à ondes acoustiques	19
<b>IV) Magnéto-diélectriques et Métamatériaux</b>	<b>19</b>
4.1) Les magnéto-diélectriques	19
4.2) Les metamatériaux	20
<b>V) Stratégie de développement et contexte de la thèse</b>	<b>22</b>
5.1) Stratégie de développement	22
5.2) Projet Radio Opportuniste	23
5.3) Organisation du manuscrit	24
<b>Références</b>	<b>25</b>
<b>Chapitre I : Rappels Théoriques</b>	<b>27</b>
<b>Magnétisme</b>	<b>28</b>
<b>I) Susceptibilité de couches minces ferromagnétiques</b>	<b>28</b>
1.1) Susceptibilité, classification	28
1.2) Aimantation et système de coordonnées	29
1.3) Termes d'énergies	30
1.4) Dynamique de l'aimantation dans un ferromagnétique	33
<b>II) Autres processus contribuant à la dynamique de l'aimantation</b>	<b>40</b>
2.1) Courants de Foucault	40
2.2) Résonance de domaine	42
2.3) Propagation d'onde de spin	43
2.4) Diffusion d'électrons itinérants par des ondes de spin	43
2.5) Diffusion à deux magnons	44
<b>III) Couplage antiferromagnétique</b>	<b>45</b>
3.4) Généralités	45
3.1) Dépendances en épaisseur	46
3.2) Modèles du couplage antiferromagnétique	48
3.3) Propriétés dynamiques du couplage d'échange	52
<b>Ferroélectricité</b>	<b>59</b>
<b>IV) Généralités sur la ferroélectricité en couches minces</b>	<b>59</b>
4.1) Définition et caractéristiques d'un diélectrique	59
4.2) Ferroélectricité	61

4.3)	Couches minces	63
4.4)	Pérovskites	64
<b>Références</b>		<b>66</b>
<b>Chapitre II : Méthodes de caractérisation</b>		<b>69</b>
<b>I)</b>	<b>Techniques de mesures RF</b>	<b>70</b>
1.1)	Paramètres S	70
1.2)	Propagation TEM	71
1.3)	Lignes de transmission – Modèle de propagation	71
1.4)	Lignes de transmission – Modèle électrique RLCG	72
1.5)	Analyseur de réseau vectoriel – VNA	73
1.6)	Calibrage	73
1.7)	Epluchage (De-embedding)	73
<b>II)</b>	<b>Perméamétrie en monospire</b>	<b>74</b>
2.1)	Modèle électrique	75
2.2)	Modèle de propagation	76
<b>III)</b>	<b>Perméamétrie en lignes coplanaires</b>	<b>78</b>
3.1)	Lignes coplanaires (CPW)	78
3.2)	Types de CPW utilisés	79
3.3)	Méthode de Barry	80
3.4)	Modèle RLCG « revu »	81
3.5)	Ondes de spin et augmentation de l'amortissement	84
3.6)	CPW intégrées et champs démagnétisants	85
<b>IV)</b>	<b>Post traitements numériques</b>	<b>85</b>
4.1)	Fonction d'ajustement préalable à la mesure de perméabilité	86
4.2)	Application à la monospire et aux lignes CPW	86
4.3)	Extraction de paramètres	87
4.4)	FMR de systèmes couplés AF	88
4.5)	Monospire : au-delà de $f_c$	89
<b>V)</b>	<b>Caractérisation des diélectriques</b>	<b>89</b>
5.1)	Capacité MIM et applications	89
5.2)	Dépendances en tension	91
5.3)	Méthodes de mesure de la permittivité	92
<b>Références</b>		<b>95</b>
<b>Chapitre III : Caractéristiques de l'hétérostructure magnéto-diélectrique</b>		<b>97</b>
<b>I)</b>	<b>Introduction</b>	<b>98</b>
<b>II)</b>	<b>Electrodes magnétiques</b>	<b>99</b>
2.1)	La technique de dépôt par pulvérisation cathodique (PVD)	99
2.2)	Fe <sub>65</sub> Co <sub>35</sub>	100
2.3)	Ni <sub>50</sub> Mn <sub>50</sub>	102
2.4)	Empilement référence F/AF	103
2.5)	Electrode magnétique finale F/AF/F	106
2.6)	Conclusion électrodes magnétiques	109
<b>III)</b>	<b>Matériaux diélectriques</b>	<b>109</b>
3.1)	Généralité sur SrTiO <sub>3</sub> en couches minces	109
3.2)	La capacité MIM	110
3.3)	Méthodes de dépôt et cristallisation	111



3.4)	Electrodes (Pt, Ru) et analyse structurale	113
3.5)	Dépendance en température de la cristallisation de STO	117
<b>IV)</b>	<b>Matériau magnéto-diélectrique</b>	<b>119</b>
4.1)	Structure « Tout PVD »	119
4.2)	Structure « Mixte » PVD-IBS	120
<b>V)</b>	<b>Conclusion</b>	<b>126</b>
<b>Références</b>		<b>127</b>
<b>Chapitre IV : Intégration à des dispositifs hyperfréquences</b>		<b>129</b>
<b>I)</b>	<b>Objets résonants</b>	<b>130</b>
1.1)	Lignes coplanaires à résonance demi onde	130
1.2)	Simulation de lignes coplanaires à résonance demi-onde à 3 GHz	136
1.3)	Lignes coplanaires non résonantes	141
1.4)	Conclusion	145
<b>II)</b>	<b>Objets rayonnants</b>	<b>146</b>
2.1)	Antennes : les points clés	147
2.2)	L'antenne dipolaire	148
2.3)	L'antenne patch	150
2.4)	Conclusion	152
<b>Références</b>		<b>152</b>
<b>Conclusion Générale</b>		<b>155</b>
<b>Perspectives</b>		<b>159</b>
<b>I)</b>	<b>Vers une famille plus large de composites multiferroïques</b>	<b>159</b>
<b>II)</b>	<b>Simulation micromagnétique du couplage AF</b>	<b>160</b>
<b>III)</b>	<b>Antennes</b>	<b>161</b>
<b>IV)</b>	<b>Jonctions tunnels magnétiques (JTM)</b>	<b>162</b>
<b>Références</b>		<b>164</b>
<b>Production scientifique</b>		<b>165</b>



# Partie Introductive

<b>I)</b>	<b>Introduction Générale</b>	<b>10</b>
<b>II)</b>	<b>Ferromagnétisme pour les hyperfréquences</b>	<b>12</b>
2.1)	Zone I : les composants passifs inductifs ( $\mu'$ )	14
2.2)	Zone II : les filtres ( $\mu''$ )	14
2.3)	Zone III : la perméabilité négative, une zone à exploiter	15
2.4)	Une rupture pour le magnétisme hyperfréquence intégré	16
<b>III)</b>	<b>Ferroélectricité pour les hyperfréquences</b>	<b>17</b>
3.1)	Les capacités	17
3.2)	Les transistors	18
3.3)	Filtres à ondes acoustiques	19
<b>IV)</b>	<b>Magnéto-diélectriques et Métamatériaux</b>	<b>19</b>
4.1)	Les magnéto-diélectriques	19
4.2)	Les metamatériaux	20
<b>V)</b>	<b>Stratégie de développement et contexte de la thèse</b>	<b>22</b>
5.1)	Stratégie de développement	22
5.2)	Projet Radio Opportuniste	23
5.3)	Organisation du manuscrit	24
	<b>Références</b>	<b>25</b>

## I) Introduction Générale

Les circuits hyperfréquences sont les éléments clefs des systèmes de télécommunication qui ont un besoin croissant de monter en fréquence et de se miniaturiser. Ils concernent une grande variété d'applications : télémétrie, technologie sans fil, téléphonie cellulaire, réseaux locaux et satellitaires, radars.... qui sont illustrées sur la figure 1.a. Par exemple, les circuits RF analogiques (Voltage Control Oscillators : VCO, Low Noise Amplifier : LNA) sont largement utilisés en téléphonie mobile dans les circuits d'émission et de réception à proximité de l'antenne. Ces dernières décennies ont vu l'émergence de nouvelles technologies de circuits hyperfréquences intégrés sur silicium. Dans ces domaines, les composants passifs (inductances, capacités, résistances) sont largement utilisés et occupent la majeure partie des surfaces sur les puces (jusqu'à 70%), comme montré figure 1.b. Le besoin d'intégration croissant de ces systèmes de télécommunication se traduit par l'implantation directe sur la couche de passivation (« Above IC », « au-dessus des circuits intégrés ») des puces des composants passifs (principalement les capacités et les inductances) jusqu'alors discrets ou reportés en flip-chip. Cette approche a nécessité ces dernières années le développement de nouveaux matériaux intégrables sur silicium et notamment :

- des matériaux magnétiques doux fortement perméables ( $\mu$ ), utilisables dans les inductances et les convertisseurs d'énergie. Les matériaux magnétiques peuvent proposer naturellement de nombreuses solutions aux dispositifs inductifs intégrés et suscitent de nouvelles applications.
- des matériaux diélectriques à forte constante diélectrique ( $\epsilon$ ), pouvant être aussi piézoélectriques ou/et ferroélectrique - principalement les oxydes de structure pérovskite -, utilisables dans les capacités, les oxydes de grilles de transistors, les filtres à onde acoustique...

Dans ces deux cas, les efforts développés en technologie « couche mince » ont permis l'amélioration de l'efficacité et la densification de ces composants. Nous donnerons à titre d'exemple le travail mené au laboratoire sur des couches minces pour les hyperfréquences au cours de deux thèses, travail qui lève partiellement les verrous à la miniaturisation d'inductances et de capacités. Ces travaux nous serviront par la suite de « briques de base », que nous essayerons de combiner :

- la thèse de Yann Lamy [1], qui a développé des couches minces ferromagnétiques (F) couplées avec un matériau antiferromagnétique (AF). Ces multicouches ont une perméabilité record et sont auto-polarisées jusqu'à 15 GHz. Le recours à ce principe d'hétérostructure a ouvert de nouvelles perspectives pour le magnétisme hyperfréquence, les matériaux « traditionnels » ayant une bande de perméabilité utile limitée à 1-2 GHz à champ magnétique statique nul. De nouveaux concepts d'inductances ont pu ainsi émerger.
- la thèse de Julie Guillan [2], qui a développé des couches minces diélectriques à haute permittivité compatibles CMOS, autorisant ainsi la réalisation de capacités de forte densité au dessus d'un circuit intégré.

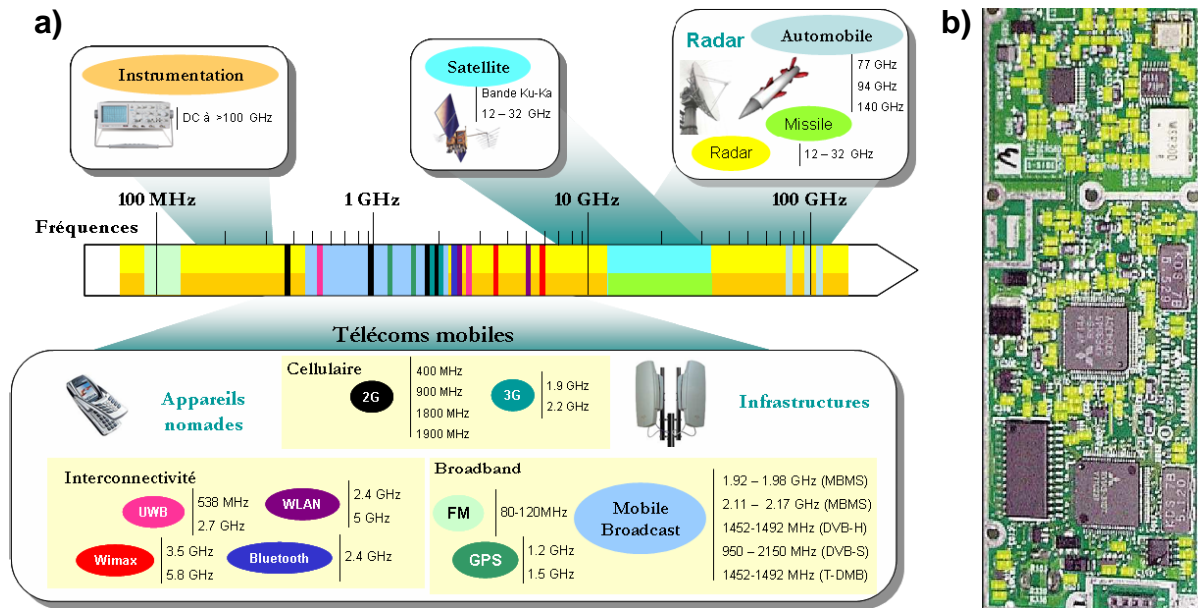


Figure 1 : a) Principales applications radiofréquences, b) Téléphone portable typique montrant les composants passifs marqués en jaune.

Aujourd'hui, un enjeu majeur du secteur des télécommunications est la thématique « Radio Opportuniste », afin de faire face à l'explosion des systèmes embarqués. La fonctionnalisation des futurs systèmes de télécommunication (on annonce onze standards cumulés sur les prochaines plateformes multimédia mobiles) doit répondre à une telle complexité annoncée. L'émergence de matériaux fonctionnalisés est une réponse possible. Notamment, de nouveaux concepts magnéto-diélectriques, ou fortement inspirés de la magnéto-électricité historique, s'inscrivent aujourd'hui pleinement dans le contexte de miniaturisation de dispositifs analogiques, comme les filtres (résonateurs quart et demi onde) ou les antennes. On peut en effet rappeler que la longueur d'onde guidée dans de tels matériaux ( $\lambda_{matériau}$ ) dépend directement de la longueur d'onde du signal les éclairant ( $\lambda_0$ ), signal inversement proportionnel à la perméabilité ( $\mu$ ) et la permittivité ( $\epsilon$ ). De plus, une autre fonctionnalité apparaît : l'adaptation d'impédance ( $Z_c$ ), qui elle est dépendante du rapport de ces deux grandeurs :

$$\lambda_{matériau} = \frac{\lambda_0}{\sqrt{\mu_{eff} \epsilon_{eff}}} \text{ et } Z_c = Z_0 \sqrt{\frac{\mu_{eff}}{\epsilon_{eff}}}$$

Les ferrites combinent déjà ces propriétés en étant à la fois magnétiques et isolants, mais souffrent de nombreuses limitations. Ils sont utilisés pour les circulateurs hyperfréquences de part leurs propriétés non réciproques uniques et ont aussi un intérêt pour les objets rayonnants ou résonants. Mais, ils souffrent d'une forte incompatibilité à l'intégration, notamment sur silicium, car ils nécessitent d'abord l'application d'un champ magnétique statique extérieur de forte amplitude afin de les saturer, et les procédés de fabrication mettent en jeu des températures trop élevées ( $> 700^\circ\text{C}$ ). De plus, leurs valeurs de permittivité et de perméabilité sont faibles ( $\sim 10$ ). En revanche, les composites à base de poudres magnétiques et diélectriques, combinées dans une matrice polymère par exemple, sont une voie réellement

prometteuse depuis l'émergence de poudres de taille nanométriques industrielles [3]. Enfin la récente thématique des métamatériaux peut aussi apporter des solutions alternatives au magnétisme naturel, notamment pour les très hautes fréquences, mais restent encore faiblement intégrables.

Ainsi, à des fins d'intégration et grâce à l'évolution des techniques de dépôt des couches minces, il est à présent opportun et crédible de vouloir combiner ces deux propriétés sous forme d'hétérostructures. En effet, il devient possible d'assembler des matériaux présentant individuellement des propriétés optimales, soit au niveau de  $\mu$  soit au niveau de  $\epsilon$ . C'est ce qui fera l'objet de cette thèse : la réalisation et l'étude d'une hétérostructure magnéto-diélectrique à forte perméabilité et forte permittivité en couche minces.

La première difficulté à surmonter sera la combinaison des phases à haute perméabilité et à haute permittivité. En effet, leurs activations thermiques respectives sont trop éloignées, et obtenir une phase à haute permittivité supprime alors l'accès à celle à haute perméabilité. On s'inspirera alors avantageusement du travail de Y. Lamy afin de réutiliser une structure magnétique de type F/AF/F, que nous appellerons par la suite « électrode magnétique », présentant déjà une perméabilité record ( $\mu = 180$ ,  $\text{tg } \delta = 5\%$  à 3 GHz) et pouvant supporter des recuits à 300°C. Nous pensons ensuite que ce verrou peut être levé en s'inspirant du travail de J. Guillaud qui a démontré qu'il est possible de cristalliser du SrTiO<sub>3</sub> ( $\epsilon = 100$ ,  $\text{tg } \delta = 2\%$  à 3 GHz) pour des applications CMOS ( $T_{\text{Max}} = 400^\circ\text{C}$ ). Dans un second temps, nous chercherons à intégrer cette hétérostructure sur des objets tests tels que des lignes coplanaires et des antennes, afin d'en observer l'effet sur la propagation d'une onde électromagnétique et sur la miniaturisation de ces objets. Enfin, nous chercherons à optimiser le couplage onde matière, qui est l'une des grandes difficultés à considérer avec les couches minces, à des fins d'efficacité optimale, en reprenant certaines des idées développées au cours du DRT de J.P Michel [4].

## II) *Ferromagnétisme pour les hyperfréquences*

Le lecteur intéressé par la problématique ferromagnétisme en couches minces appliqué aux hyperfréquences trouvera de plus amples informations à la lecture de l'habilitation à diriger les recherches de Bernard Viala [5], Ingénieur de Recherche au CEA-LETI. Il a fortement contribué à cette thématique par ses idées originales, souvent en rupture avec l'état de l'art, et la concrétisation de démonstrateurs aboutis.

Dans cette partie, nous reviendrons brièvement sur l'utilisation dans le domaine hyperfréquence des couches minces ferromagnétiques, et nous donnerons quelques exemples d'application. En régime micro onde, la grandeur caractéristique des matériaux magnétiques est la perméabilité  $\mu$ . Elle représente la capacité du matériau à réagir à un champ magnétique, ici radiofréquence (RF). C'est une grandeur complexe : sa partie réelle ( $\mu'$ ) caractérise le pouvoir canalisant par le matériau de lignes de champ magnétiques environnantes alors que sa partie imaginaire ( $\mu''$ ) caractérise la capacité du matériau à dissiper l'énergie (par effet joule), à travers la résonance ferromagnétique.

Grâce à la technologie des couches minces, il est aujourd'hui possible d'utiliser les matériaux ferromagnétiques doux pour leurs propriétés exceptionnelles de perméabilité, par opposition aux ferrites. En effet, bien que tout matériau magnétique possède une perméabilité, celle-ci est généralement faible si l'ensemble du matériau ne réagit pas de manière homogène. En couche mince, du fait des très faibles épaisseurs, l'aimantation est grandement homogène dans le plan des couches, et est généralement orientée dans une direction particulière de façon naturelle (au sens où il n'y a pas recours à des moyens de polarisation extérieure). On peut donc simplifier grandement la dynamique de l'aimantation, et se placer dans l'approximation « macrospin », c'est-à-dire d'une réponse homogène dans tout le matériau. De plus, l'intérêt pour les films d'alliages ferromagnétiques est l'accès aux très hautes aimantations ( $\sim 2$  T). Par contre, ces derniers sont métalliques et sujets à l'effet de peau qui détériore très vite les performances à haute fréquence. Encore une fois, les couches minces permettent de se placer hors de ce régime, en fabriquant des couches ferromagnétiques d'épaisseur inférieure à l'épaisseur de peau et en alternant des isolants fins (comme la silice) : c'est ce que l'on nomme des couches « laminées », voir « nano-laminées ».

Comme représenté schématiquement sur la figure 2, on dissocie généralement le spectre de perméabilité en trois zones d'application, que nous allons décrire ci-dessous. Notons tout d'abord quelques grandeurs caractéristiques qui seront régulièrement citées au cours de ce manuscrit : l'aimantation à saturation  $M_s$  et le champ magnétique effectif vu par le matériau  $H_{eff}$  qui agiront directement sur les trois principales grandeurs décrivant la perméabilité :

- $\mu_{dc}$  : la perméabilité quasi statique, caractéristique du niveau de perméabilité du matériau et qui s'écrit :

$$\mu_{dc} = 1 + \frac{M_s}{H_{eff}}$$

- $f_r$  : la fréquence de résonance ferromagnétique, correspondant au maximum des pertes, et qui s'écrit :

$$f_r = \frac{\gamma_0}{2\pi} \sqrt{(H_{eff} + M_s) H_{eff}}$$

- $\Delta f$  : la largeur de raie à mi hauteur, représentant la bande de fréquence dans laquelle la dissipation atteint un maximum ( $\mu''_{Max}$ ). Elle peut être reliée à l'amortissement intrinsèque du matériau ( $\alpha$ ).

$$\Delta f = \alpha(2H_{eff} + M_s) \text{ et } \mu''_{max} \approx \frac{\gamma_0}{2\pi} \frac{M_s}{\alpha f_r}$$

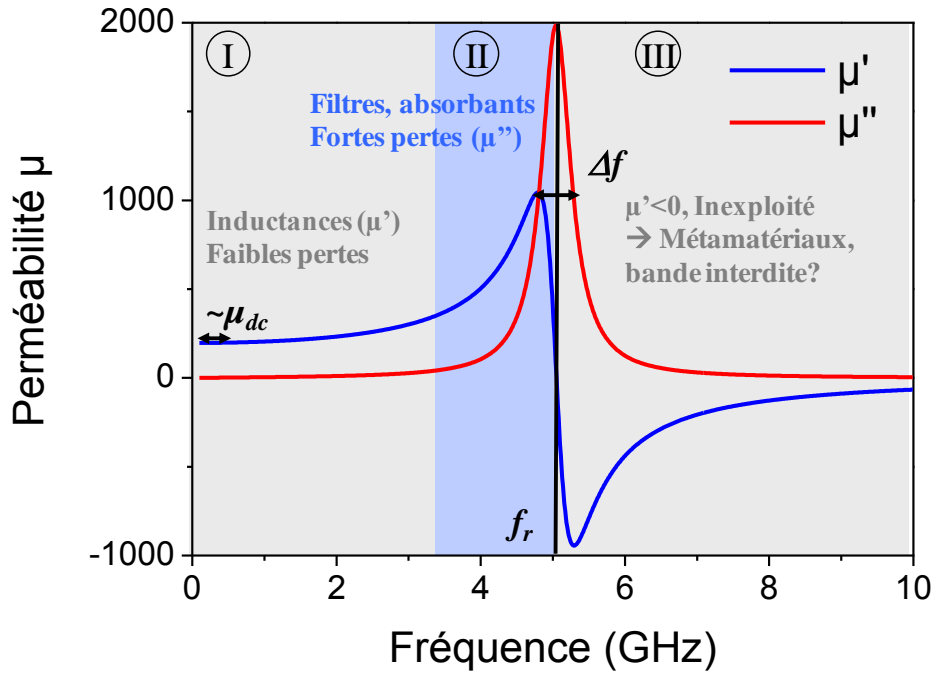


Figure 2 : Illustration des différentes zones d'utilisation de la perméabilité suivant les applications visées.

### 2.1) Zone I : les composants passifs inductifs ( $\mu'$ )

C'est la zone d'utilisation dite « faibles pertes ou faible perte » à l'origine historique de l'intégration des matériaux magnétiques doux. Grâce à leur forte perméabilité, ceux-ci vont permettre de concentrer les lignes de champ magnétiques dans les dispositifs inductifs pour augmenter les performances à taille égale ou inversement gagner en compacité à performance égale. C'est le cas des têtes d'enregistrement magnétique, des inductances et autres transformateurs. Citons l'exemple de la téléphonie mobile qui fonctionne actuellement sur une bande de fréquence comprise entre 900 MHz et 2400 MHz et qui nécessite un grand nombre de composants passifs dont font partie les inductances planaires. L'ajout de plans magnétiques augmente significativement l'inductance  $L$  du dispositif (de + 30 à 100 %) et permet par conséquent un gain de surface important (Thèse S. Coudrec [6]). Les films minces doivent alors présenter une perméabilité élevée jusqu'à la fréquence d'utilisation du dispositif ( $\sim 2$  GHz) sous réserve de ne pas augmenter les pertes significativement. On travaille donc dans le régime dit de « faible pertes » avant la fréquence de résonance du matériau. Typiquement la fréquence d'utilisation est 2 à 3 fois inférieure à  $f_r$ . Le principal travail dans ce contexte a été, d'une part, d'élaborer des matériaux à haute fréquence de résonance ( $> 5$  GHz), et d'autre part d'avoir des matériaux (homogènes ou hétérogènes) suffisamment résistifs afin d'augmenter significativement l'épaisseur utile ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ), sans être limité par les courants de Foucault [6].

### 2.2) Zone II : les filtres ( $\mu''$ )

A l'inverse, pour certaines applications, on cherchera à exploiter le pic de pertes ferromagnétiques. En effet, certains filtres élémentaires (coupe bande ou « notch » en anglais)



peuvent être constitués de couches magnétiques disposées au voisinage d'un guide d'onde dans lequel se propage le signal que l'on souhaite filtrer. Aussi, depuis quelques années, il commence à apparaître des idées de filtres intégrés à base de couches minces ferromagnétiques [7, 8]. Un exemple en est donné figure 3.a, avec la propagation d'un guide d'onde de type micro-ruban, utilisant une couche de permalloy disposée entre les deux plans conducteurs. Il en résulte une absorption du signal transmis à la résonance ferromagnétique. Les fréquences de résonance très élevées de la couche magnétique restent néanmoins obtenues ici en appliquant un champ magnétique externe. En revanche, Y. Lamy [1] et J.P. Michel [4] ont montré la possibilité d'absorber jusqu'à 50% la puissance transmise sur une ligne coplanaire de seulement 1mm de long, à plus de 10 GHz. Ce résultat est à remarquer puisqu'il repose sur l'utilisation d'une couche magnétique de seulement 100 nm d'épaisseur et sans application de champ extérieur, en ayant recours ici au couplage antiferromagnétique qui sera décrit plus loin en détails (figure 3.b).

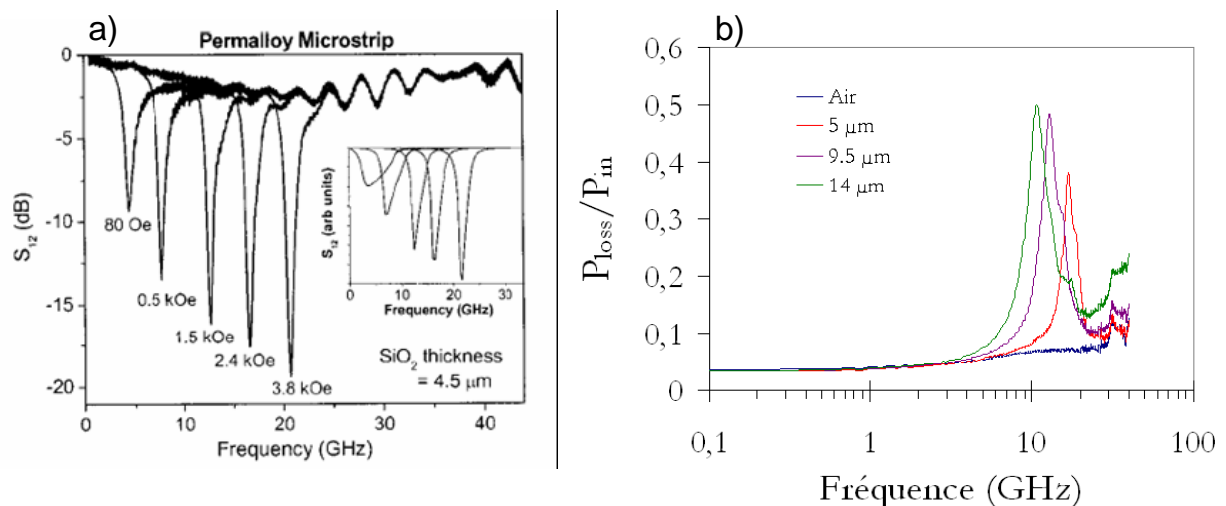


Figure 3 : a) Facteur de transmission en fonction de la fréquence d'un filtre micro-ruban contenant une couche ferromagnétique pour différentes fréquences de résonance obtenues en appliquant un champ magnétique externe de différentes amplitudes. D'après Kuanr et al. [7], b) Pertes de puissance pour différentes lignes coplanaires intégrées de 1mm de long utilisant un film de  $Fe_{65}Co_{35}$  couplé antiferromagnétiquement [4].

De même, les applications liées à la furtivité et à l'absorption des ondes radars requièrent également des matériaux magnétiques avec une fréquence de résonance de l'ordre de quelques GHz, et avec l'obligation ici de s'affranchir de champ extérieur. Ceci a amené le CEA le Ripault à développer une technique de dépôt sur substrat souple par défilement qui conduit à des fréquences de résonance intrinsèques plus élevées que la normale [9]. Notons qu'ici on cherche à élargir le pic de résonance ( $\Delta f$ ) afin de bénéficier d'une absorption large bande. C'est ici contradictoire avec le besoin de sélectivité que nous recherchons.

### 2.3) Zone III : la perméabilité négative, une zone à exploiter

Cette troisième zone, dite de « perméabilité négative », est encore inexploitée dans le cadre des matériaux ferromagnétiques « naturels », alors qu'il s'agit d'une notion déterminante pour les métamatériaux. L'accès à une telle perméabilité négative n'est réalisé

exclusivement à l'heure actuelle qu'au travers de structures artificielles, comme il sera détaillé un peu plus loin dans ce chapitre.

La figure 4 résume les différents effets de la combinaison de valeurs positive et/ou négatives de la perméabilité et de la permittivité. On s'aperçoit alors qu'il peut y avoir intérêt à utiliser un milieu à perméabilité négative naturelle car l'amplitude sera bien plus élevée que pour les structures artificielles, soit pour créer des structures à bandes interdites ( $\mu < 0, \epsilon > 0$ ), soit des objets à effet main gauche ( $\mu < 0, \epsilon < 0$ ). Nous reviendrons sur cette thématique dans les conclusions et perspectives de ce manuscrit.

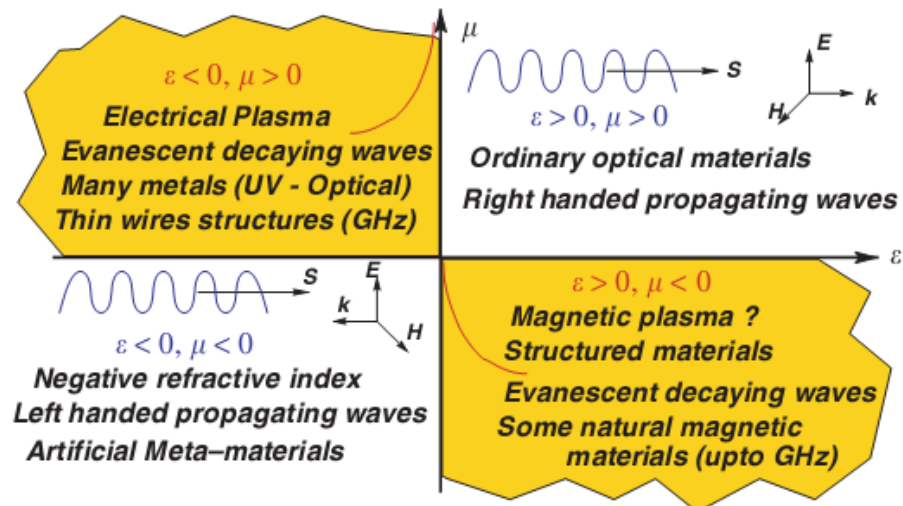


Figure 4: Illustration de la classification des matériaux basée sur leurs propriétés magnétiques et diélectriques, avec les espaces propagatifs main droite et main gauche (cadrans 2 et 3), et les espaces évanescents (cadrans 1,4) suivant que les combinaisons de la perméabilité et de la permittivité sont positives et/ou négatives.  $S$  est le vecteur de Pointing. Figure issue de [10].

## 2.4) Une rupture pour le magnétisme hyperfréquence intégré

Nous venons de le voir brièvement, la bataille du ferromagnétisme pour les applications intégrées haute fréquence ne fait que commencer. En effet, les couches minces des principaux alliages ferromagnétiques historiques ont des fréquences de résonance ferromagnétique naturelles trop « basses » (1 à 2 GHz), en comparaison des besoins des technologies actuels et futurs. Pour satisfaire ces besoins, l'option classique consiste à appliquer un champ magnétique extérieur, ce qui est trop coûteux en énergie et en surface.

Face à cette problématique, une idée en rupture avec l'état de l'art a été poussée au laboratoire, portée entre autre par B. Viala. Nous en avons parlé précédemment, et elle a été fortement valorisée au cours de la thèse de Y. Lamy, c'est l'idée d'utiliser le couplage d'échange à l'interface d'une couche mince ferromagnétique et d'une couche mince antiferromagnétique. Cela crée une densité d'énergie extraordinaire, assimilable à celle d'un champ magnétique statique de très forte amplitude (plusieurs kOe). Cette énergie relève d'un couplage interfacial, et la valeur du champ magnétique statique associé (champ d'échange) est inversement proportionnelle à l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Dès lors, il est possible d'utiliser des matériaux ferromagnétiques « auto polarisés » dont la fréquence de résonance peut être ajustée à l'application souhaitée et jusqu'à plus de 10 GHz. De plus, cette

solution a l'énorme avantage de permettre d'utiliser des alliages à très forte aimantation ( $M_s$ ), comme  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  qui ne sont pas doux naturellement à cause d'une forte anisotropie magnétocristalline ( $K_1$ ). On se rappelle alors que plus  $M_s$  est grand, plus la fréquence de résonance  $f_r$  sera élevée et plus la perméabilité quasi statique  $\mu_{dc}$  sera grande. On bénéficie alors de matériaux en couches minces présentant des propriétés théoriques optimales pour la RF, qui entrent directement en compétition avec les ferrites dans un domaine de fréquence qui leur était exclusivement réservé jusque là, comme le montre la figure 5. Il existe cependant d'autres limitations qui vont modérer les résultats comme nous le verrons plus loin (caractère conducteur, dilution de la perméabilité en multicouches...)

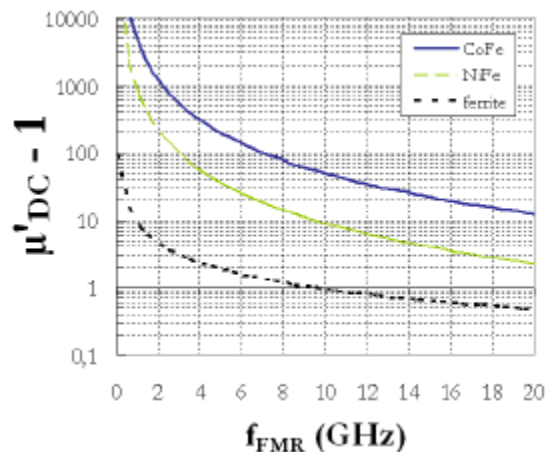


Figure 5 : Illustration théorique de la limite de Snoek pour une ferrite classique ( $M_s = 5 \text{ kG}$ ) comparée à  $\text{NiFe}$  ( $M_s=10 \text{ kOe}$ ) et  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  ( $M_s = 24 \text{ kOe}$ ) [5]. L'ajustement de  $f_{FMR}$  en fréquence est réalisé par l'application d'un champ de bias extérieur pour la ferrite et par un champ de bias interne (couplage AF) pour les deux couches ferromagnétiques (on ne tient pas compte ici de la dilution de la perméabilité due à la présence des couches AF).

### III) Ferroélectricité pour les hyperfréquences

Le lecteur intéressé par l'utilisation de la ferroélectricité en hyperfréquence trouvera de plus amples informations à la lecture de l'habilitation à diriger des recherches de Emmanuel Defay [11], Ingénieur Chercheur au laboratoire. Il présente un état de l'art récent sur les avancées et les dispositifs ferroélectriques. On s'intéressera ici principalement à l'intégration de diélectriques à forte permittivité, notamment, les pérovskites.

#### 3.1) Les capacités

Les capacités intégrées se séparent en trois familles distinctes : les capacités RF souvent assimilées aux capacités MIM (pour Metal-Insulator-Metal), les capacités de découplage et les capacités variables.

Les capacités RF font parties de circuits qui nécessitent une valeur de capacité très précise, pas nécessairement élevée, mais avec très peu de variation avec la température et avec la tension de polarisation. Les diélectriques à très forte constante ne constituent pas

nécessairement une solution pour cette application car leur valeur de permittivité varie avec la tension de polarisation et la température. Ils ont cependant un intérêt dans la perspective d'augmentation de la capacité surfacique. Il est alors envisagé d'associer des diélectriques de très forte permittivité avec des diélectriques de très bonne linéarité (par exemple  $\text{SrTiO}_3$  et  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ).

La deuxième application concerne les capacités de découplage. Par ce terme sont englobées toutes les capacités utilisées entre les blocs fonctionnels d'un dispositif électronique. Elles sont utilisées principalement pour la valeur d'impédance qu'elles présentent à une fréquence donnée. Les pérovskites peuvent naturellement apporter des solutions pour ces applications : au-delà du gain de place évident que procurent ces capacités intégrées par rapport aux composants discrets, l'inductance parasite et la résistance série sont très largement diminuées permettant ainsi d'augmenter la fréquence maximale de travail.

Le domaine des micro-ondes a également un grand besoin d'éléments variables qui soient intégrables et ayant de faibles pertes. Ce domaine est très prisé car il concerne tous les systèmes de communication. Ainsi, bien que les transistors puissent atteindre des fréquences supérieures à 100 GHz, les éléments variables en technologie CMOS n'ont pas atteint aujourd'hui ce niveau de performances. Les capacités ferroélectriques pourraient apporter une solution à cette problématique. Plusieurs systèmes ou blocs RF pourraient bénéficier de l'essor de ces matériaux ferroélectriques comme les lignes à retard accordables ou bien des réseaux à éléments variables tel que les circuits d'adaptation d'impédance.

### **3.2) Les transistors**

La course à la miniaturisation des transistors MOS est aujourd'hui limitée par l'oxyde de grille. En effet, si on diminue la surface de la grille du transistor, il faut diminuer l'épaisseur de l'oxyde pour éviter que la capacité MOS ne soit trop faible et qu'il n'y ait plus assez de charges pour pouvoir commander le transistor. Cependant, cette diminution d'épaisseur induit une augmentation du courant de fuite à travers la grille. Ce courant de fuite est un courant tunnel et ne dépend donc que de l'épaisseur. Pour s'en affranchir, une solution est de remplacer l'oxyde de silicium par un isolant de constante diélectrique plus élevée. Ainsi, pour une valeur de capacité donnée, l'épaisseur de diélectrique peut être plus importante, évitant par la même le courant de fuite par effet tunnel, démarche qui vaut aussi pour les jonctions tunnel magnétiques dans une autre problématique. Les matériaux pérovskites ayant une constante diélectrique naturellement élevée sont donc a priori des candidats de choix pour cet isolant de grille. Cependant, des électrodes métalliques peu ou pas usités (Pt, Ru, Ir) dans la microélectronique sont aussi à envisager pour l'intégration des pérovskites. Finalement, les difficultés sont multiples pour l'utilisation des pérovskites en tant qu'oxyde de grille de transistors MOS. Aujourd'hui, pour cette application, la recherche se porte plutôt sur des matériaux dits de constantes diélectriques intermédiaires, entre 15 et 30, dont les oxydes d'hafnium ( $\text{HfO}_2$ ) et de zirconium ( $\text{ZrO}_2$ ) ou de Tantale ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) par exemples.

### **3.3) Filtres à ondes acoustiques**

Les filtres à ondes acoustiques de surface (appellation SAW pour « Surface Acoustic Waves ») sont utilisés depuis de nombreuses années pour filtrer l'étage d'entrée des téléphones portables. Ces filtres sont réalisés sur un substrat piézoélectrique monocristallin ( $\text{LiNbO}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ...), ce qui en fait une technologie très spécifique et non compatible silicium. La fréquence centrale de filtrage maximale dépend de l'espacement entre les doigts des peignes interdigités. Cette fréquence est donc limitée par la résolution de la lithographie. Concrètement, des fréquences au-delà de 2 GHz deviennent très difficiles à réaliser technologiquement.

Afin de pouvoir atteindre des fréquences de travail plus élevées les filtres acoustiques à ondes de volume (appellation BAW pour « Bulk Acoustic Waves ») se sont imposés ces dernières années. Cette technologie sur substrat silicium est basée sur la génération d'une onde de volume dans un résonateur acoustique grâce à l'intégration de couches minces piézoélectriques et utilisent principalement l'AlN. Le mode de résonance utilisé est communément appelé « mode d'épaisseur » car le but est de générer une résonance acoustique en demi longueur d'onde dans l'épaisseur du résonateur constitué par le piézoélectrique et ses électrodes. Par rapport aux SAW, les dispositifs BAW présentent l'avantage de pouvoir monter plus haut en fréquence, de ne pas être limités par la lithographie et ils supportent également mieux les puissances RF élevées. De nouvelles technologies émergent également avec une combinaison d'onde de surfaces appelées « ondes de Lamb ». La réalisation technologique est simplifiée car les ondes sont générées sur les dimensions latérales du résonateur, on est donc moins sensible à l'épaisseur de la couches piézoélectrique qui est le point critique pour le BAW.

## **IV) Magnéto-diélectriques et Métamatériaux**

Nous citons ici deux autres alternatives à la miniaturisation et à la fonctionnalisation de dispositifs rayonnants ou résonants.

### **4.1) Les magnéto-diélectriques**

Les matériaux magnéto-diélectriques massifs ont été très étudiés par le passé. On peut les différencier en deux classes :

Les ferrites : très bien connus aujourd'hui, après plus d'un demi-siècle d'utilisation. Ils sont à la fois diélectriques et magnétiques et peuvent présenter des effets magnétiques non réciproques qui sont très utilisés pour les circulateurs. Cependant, les ferrites appartiennent à la classe des ferrimagnétiques et par définition ne peuvent posséder que des aimantations résultantes faibles. C'est en ce sens que nous les différencions des alliages ferromagnétiques. Les amplitudes de  $\mu$  et de  $\varepsilon$  sont donc de valeurs modérées. En terme applicatif, leur principal désavantage est de ne pas être naturellement auto-polarisé, à l'exception de quelques

composés (ferrites dopées au Baryum), ce qui oblige à utiliser ces matériaux avec un champ magnétique statique externe, fortement antinomique avec la notion d'intégration.

Les multiferroïques sont une classe à part d'oxydes qui possèdent une phase électrique et une phase magnétique. Il est alors possible d'agir avec un champ électrique sur un état magnétique et réciproquement. On peut classer les multiferroïques en deux grandes catégories :

- Ceux qui possèdent de manière intrinsèque ces phases. Cette propriété a été découverte dès 1888, mais les techniques récentes de dépôt épitaxial avec un bon contrôle de la croissance et des contraintes ouvrent seulement aujourd'hui des perspectives applicatives de ces matériaux, qui bien souvent fonctionnent seulement dans des conditions spécifiques (basse température). Citons par exemple  $\text{BiFeO}_3$  qui combine ferroélectricité et antiferromagnétisme. Il est très en vue actuellement car il est capable de changer l'orientation du couplage d'échange antiferromagnétique avec une couche ferromagnétique par le biais d'une tension, ce qui a présente un fort intérêt pour les mémoires hybrides entre FRAM et MRAM.
- Les composites à base de poudre : cette technique n'est pas nouvelle, et consiste à utiliser des matériaux réduits en poudre. Ils peuvent être ensuite mélangés à un polymère et pressés, ou dilués dans une résine fluide, mais ils restent principalement massifs. Ils connaissent aujourd'hui un regain d'intérêt du fait du bon contrôle (industriel) de fabrication de poudres de taille nanométrique, ce qui permet d'obtenir des densités de charge élevées (40%) et d'avoir des couplages entre grains bien plus forts et des composés moins poreux. La démonstration de couplages magnétoélectriques de forte intensité, et aussi la limitation des courants de Foucault dans le domaine des microondes [3] sont des avantages de premier plan.

On trouvera un article de revue plus détaillé à propos de ce sujet, par M. Fiebig [12].

## 4.2) Les metamatériaux

Ce terme désigne un matériau composite artificiel qui présente des propriétés électromagnétiques qu'on ne retrouve pas dans un matériau naturel, et particulièrement une perméabilité et une permittivité simultanément négatives. Les effets produits alors sont singuliers. Ils ont été prédits par Veselago dès 1967 [13], mais ce n'est que récemment que cette thématique a connu une progression fulgurante dans un premier temps, suite à la démonstration par J. Pendry [14, 15] de la possibilité de créer des structures artificielle présentant une perméabilité et/ou une permittivité effective négative et/ou positive, puis par la récente démonstration expérimentale de l'effet main gauche par R. Smith [16] (figure 6). Dans le domaine microonde, les moyens les plus usités pour créer une perméabilité artificielle sont les « SRR » (Split Ring Resonators) qui sont des boucles métalliques fendues créant une résonance LC assimilable à la résonance ferromagnétique. Pour la permittivité négative, le principe consiste à utiliser un réseau de fils métalliques, ce qui crée une résonance plasmonique. La dilution du milieu donne alors une permittivité négative d'amplitude modérée dans le domaine hyperfréquence. Par contre, dans les deux cas, des conditions

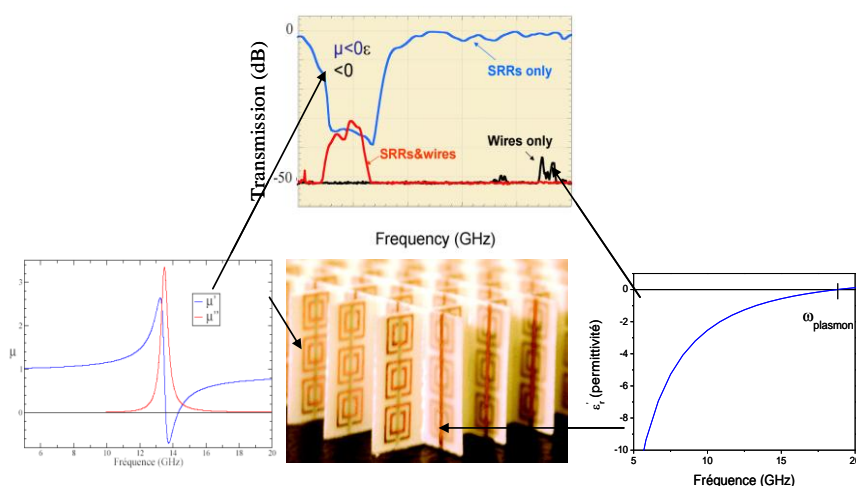
spécifiques sont requises : des objets de taille très inférieure à la longueur d'onde éclairant le milieu (dix fois), et un effet de réseau.

On se rappellera la figure 4 qui illustre les différents effets sur la propagation de la combinaison des signes respectifs de la perméabilité et la permittivité. La combinaison de ces deux grandeurs dans les valeurs négatives conduit à l'exemple le plus connu d'un indice de milieu qui devient négatif, ce qui a pour conséquence d'inverser le trièdre de propagation  $\mathbf{E-H-k}$  (champ électrique – magnétique – vecteur de propagation) de l'onde électromagnétique. On passe alors d'une propagation « main droite » à une propagation dite « main gauche ». La conséquence est que les vitesses de groupe et de phase sont de directions opposées, en d'autres termes, les vecteurs d'énergie et de propagation se propagent en sens inverses. Les effets qui en découlent sont alors originaux ; nous les listons ci-dessous sans les détailler :

- Amplification des ondes évanescentes (super lentille)
- Effet Doppler inversé
- Effet Tcherenkov inversé

Des idées applicatives tels que la super lentille plate (convergence parfaite) ou la cape d'invisibilité ont été proposés et partiellement réalisés expérimentalement. Mais cela reste aujourd'hui des prototypes de laboratoire fonctionnant sur de très petites bandes de fréquences et dans des conditions bien spécifiques. Les perspectives que cela ouvre pour le domaine des hyperfréquences, comme pour l'optique, sont fascinantes d'un point de vue de la physique et d'un grand intérêt pour certains domaines applicatifs, notamment, militaires. Toutefois, ces dispositifs restent encore très peu intégrables et à fortes pertes d'insertion. En revanche, de nombreux dispositifs ont été développés utilisant ces structures artificielles afin de miniaturiser et d'augmenter l'efficacité de dispositifs de propagation tels que les guides d'onde et les antennes.

On trouvera un très bon article de revue à propos de ce sujet, par Ramakrishna [10].



**Figure 6 : Illustration de l'effet main gauche créé par une structure en metamatériaux, utilisant des anneaux fendus conducteurs (SRR) pour la perméabilité négative et des réseaux de fils conducteurs la permittivité négative [16].**

## V) Stratégie de développement et contexte de la thèse

### 5.1) Stratégie de développement

Nous l'avons vu au cours de cette introduction, le but de ce travail de thèse est de concevoir, caractériser, et intégrer une hétérostructure à forte perméabilité et à forte permittivité, sous réserve de faibles pertes en hautes fréquences et utilisant des couches minces. La bande spectrale visée s'étend de 1 à 10 GHz. L'enjeu repose sur un compromis jamais réalisé en terme de températures de procédé, ce qui est illustré sur la figure 7 par l'écart de qui sépare actuellement l'état de l'art conventionnel des couches minces ferromagnétiques de celui des couches minces ferroélectriques. Un compromis possible vient des travaux récents du laboratoire mais de façon totalement disjointe comme illustré en « vert en pointillés ».

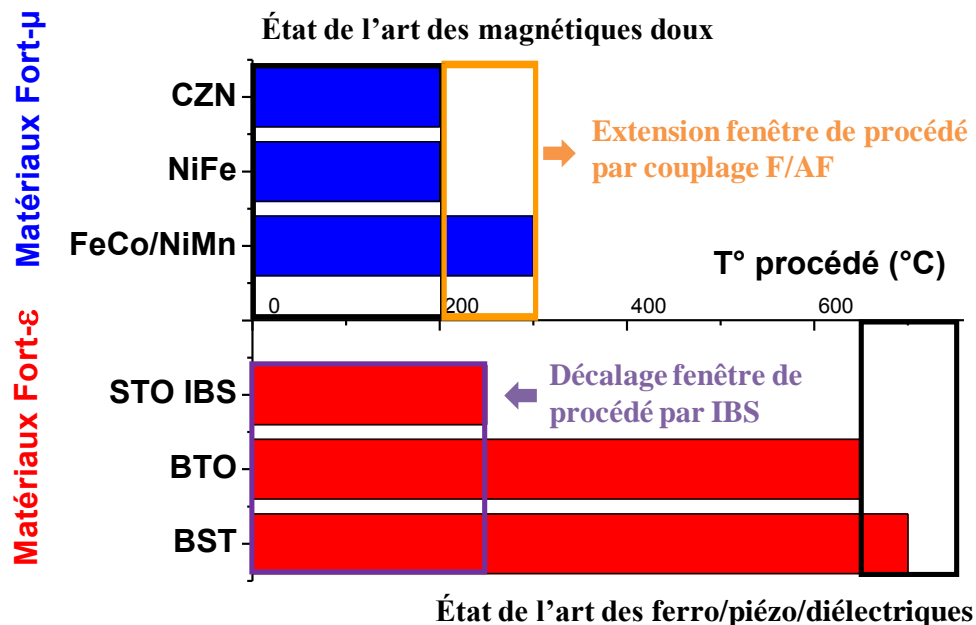


Figure 7 : illustration des écarts de compatibilité thermique entre matériaux magnétiques à forte perméabilité et diélectriques à forte permittivité.

La stratégie de développement consistera dès alors à :

1. S'inspirer des empilements magnétiques de type F/AF mis au point par Y. Lamy, afin d'obtenir de véritables électrodes magnétiques douces supportant des températures de mise en œuvre supérieur ou égale à 300°C.
2. Pousser l'étude de cristallisation de SrTiO<sub>3</sub> en s'appuyant sur le travail de J. Guillan dans un premier temps avec des électrodes conventionnelles de platine, puis qui seront progressivement remplacées par les électrodes magnétiques afin de satisfaire au compromis le plus favorable sur les températures de procédés respectifs.



3. Réaliser la combinaison des électrodes magnétiques douces et du diélectrique dans des empilements, d'abord élémentaires (simple alternance), puis de plus en plus complexes (multi-alternance). Il s'agira alors d'identifier les points forts et les points faibles à cette association et de caractériser finement cette hétérostructure du point de vue des propriétés magnétiques, diélectriques et structurales.
4. Intégrer une première version de cette hétérostructure magnéto-diélectrique à des dispositifs adaptés, particulièrement des guides d'onde, et explorer son efficacité en termes de miniaturisation et de fonctionnalisation, notamment pour les filtres et les antennes.
5. Réfléchir à de nouveaux dispositifs originaux car les propriétés inédites de ce matériau sont susceptibles d'apporter de nouvelles solutions en termes d'application dont on essaiera de tirer profit.

## 5.2) Projet Radio Opportuniste

Ce travail de thèse s'inscrit dans un contexte plus global, le projet CARNOT « Radio Opportuniste », porté par le LETI. Ce projet vise à explorer des solutions en rupture, parmi lesquelles de nouveaux matériaux avec, par exemples, les hétérostructures magnéto-diélectriques et des structures hybrides piézo-magnétiques. On cherche à miniaturiser et à rendre agile la plus grande partie de la chaîne de communication pour les futures plateformes mobiles (figure 8).

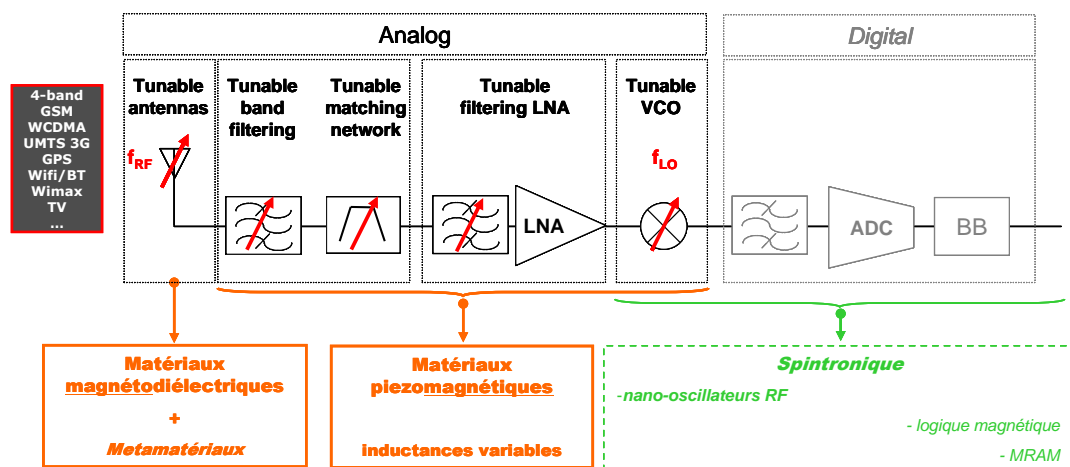


Figure 8 : Résumé des objectifs d'innovation de la chaîne de télécommunication visé par le projet CARNOT « Radio Opportuniste » au LETI

Ce projet sera notamment l'occasion de collaborations interdisciplinaires couvrant tous les domaines entre celui des matériaux et celui des systèmes, en passant par la simulation et la conception de dispositifs élémentaires. Dans ce cadre, les laboratoires avec lesquels j'ai pu interagir sont :

- le CEA/LITEN/DTN/LTS pour le dépôt des matériaux
- le CEA/LETI/DCIS/SMOC pour la conception d'antennes (Thèse F. Grange)
- l'IETR pour la conception d'antennes (Thèse D. Rialet)

- le CEA/INAC/SPINTEC pour la caractérisation magnétique et RF
- XLIM/ MINACOM et TESA pour la simulation

Enfin, une collaboration très étroite s'est naturellement établie avec le travail de post-doctorat de E. Bènevent en charge de coordonner l'étude pour le laboratoire et d'effectuer une partie de la simulation. Son expertise en simulation sur HFSS a été d'un grand secours.

### **5.3) Organisation du manuscrit**

Le manuscrit comporte quatre chapitres hors partie introductive. Le chapitre I est consacré, dans un premier temps, à des rappels généraux sur la dynamique d'aimantation dans les matériaux doux classiques puis, dans un second temps, à la présentation du couplage d'échange et son application aux hyperfréquences. Il finira par quelques généralités sur la ferroélectricité. Le chapitre II est réservé aux techniques de mesure et de caractérisation de nos matériaux, avec un effort particulier pour optimiser les techniques de caractérisation de la perméabilité à plus de 5 GHz. Le chapitre III fait état des propriétés du matériau développé en dissociant, tout d'abord, les propriétés magnétiques et diélectriques, puis en présentant une version finale de l'hétérostructure. Enfin, le chapitre IV s'intéresse aux tout premiers essais d'intégration d dans des structures coplanaires et des antennes, afin d'évaluer le potentiel de miniaturisation du matériau sur de tels objets.

# Références

- [1] Yann Lamy, « *Matériaux magnétiques doux hétérogènes à combinaison d'aimantation élevée et de grande anisotropie utilisant le couplage d'échange, pour applications microondes* », PhD thesis, Université de Limoges (2006)
- [2] Julie Guillan, « *Etude de capacités en couches minces à base d'oxydes métalliques à très forte constante diélectrique, BaTiO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub> et SrTiO<sub>3</sub>/BaTiO<sub>3</sub> déposées par pulvérisation par faisceau d'ions* », PhD thesis, Université Joseph Fourier de Grenoble (2005)
- [3] V. Castel, C. Brosseau, and J. Ben Youssef, « *Magnetolectric effect in BaTiO<sub>3</sub>/Ni particulate nanocomposites at microwave frequencies* », J. Appl. Phys., Vol. 106, p. 064312 (2009)
- [4] Jean-Philippe Michel, « *Lignes coplanaires ferromagnétiques sur silicium pour applications microondes* », Diplôme de Recherche Technologiques, Université Joseph Fourier de Grenoble (2006)
- [5] Bernard Viala, « *Le ferromagnétisme pour les hyperfréquences* », Habilitation à Diriger les Recherches, Université Joseph Fourier de Grenoble (2008)
- [6] Sandrine Couderc, « *Etude de matériaux ferromagnétiques doux à forte aimantation et à résistivité élevée pour les radio fréquences* », PhD thesis, Université de Limoges (2006)
- [7] B. Kuanr, L. Malkinski, R.E. Camley, Z. Celinski, and P. Kabos "Iron and Permalloy base magnetic monolithic tunable microwave devices", J. Appl. Phys, Vol. 93, p. 8591 (2003)
- [8] A.L. Adenot, O. Acher, T. Taffary, P. Quéffélec, and G. Tanné, "Tuneable microstrip devics controlled by weak magnetic fiels using ferromagnetic laminations", J. Appl. Phys, Vol. 87, p. 6914 (2000)
- [9] O. Acher, P.M. Jacquart, J.M. Fontaine, P. Baclet, and G. Perrin, "High impedance anisotropic composites manufactured from ferromagnetic thin films for microwave applications", IEEE Trans. Mag., Vol. 30, p. 4533 (1994)
- [10] Ramakrishna, "Physics of negative refractive index materials", Rep. Prog. Phys., Vol. 68, p. 449–521(2005)
- [11] Emmanuel Defaÿ, « *Intégration de pérovskites dans la technologie silicium* », Habilitation à Diriger les Recherches, Université Joseph Fourier de Grenoble (2007)
- [12] M. Fiebig, « *Revival of the magnetolectric effect* », J. Phys. D Appl. Phys., Vol. 38, p. 123-152 (2005)
- [13] V. G. Velesago, "The electrodynamics of substance with simultaneously negative values of  $\mu$  and  $\varepsilon$ ", Sov. Phys. Usp, Vol. 10, p. 509 (1968)
- [14] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbinsz and W. J. Stewart, "Low frequency plasmons in thin-wire structures", J. Phys. Condens. Matter, Vol. 10, p. 4785–4809 (1998)
- [15] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart, "Magnetism from Conductors and Enhanced Nonlinear Phenomena", IEEE Trans. Microwave Theory and Techniques, Vol. 47, p. 2075 (1999)
- [16] R. A. Shelby, D. R. Smith, S. Schultz, "Experimental VeriPcation of a Negative Index of Refraction", Science, Vol. 292, p. 77 (2001)



# Chapitre I : Rappels Théoriques

## **Magnétisme**

<b>I) Susceptibilité de couches minces ferromagnétiques</b>	<b>28</b>
1.1) Susceptibilité, classification	28
1.2) Aimantation et système de coordonnées	29
1.3) Termes d'énergies	30
a) Energie d'échange d'Heisenberg	30
b) Energie de Zeeman	30
c) Energie d'anisotropie	31
d) Energie d'anisotropie de surface	31
e) Energie magnétostatique – champs démagnétisant	32
f) Energie magnétostrictive	33
g) Energie d'échange antiferromagnétique	33
1.4) Dynamique de l'aimantation dans un ferromagnétique	33
a) Description du modèle dynamique	33
b) Approximation linéaire en petit signaux	35
c) Perméabilité dynamique de couches minces ferromagnétiques	37
d) Excitation dynamique suivant l'axe difficile	38
<b>II) Autres processus contribuant à la dynamique de l'aimantation</b>	<b>40</b>
2.1) Courants de Foucault	40
2.2) Résonance de domaine	42
2.3) Propagation d'onde de spin	43
2.4) Diffusion d'électrons itinérants par des ondes de spin	43
2.5) Diffusion à deux magnons	44
<b>III) Couplage antiferromagnétique</b>	<b>45</b>
3.4) Généralités	45
3.1) Dépendances en épaisseur	46
3.2) Modèles du couplage antiferromagnétique	48
a) Modèle intuitif de Meiklejohn : interface idéale non compensée	48
b) Formation de parois dans l'AF : modèle de Néel/Mauri	48
c) Spins non compensés à l'interface : Modèle de Takano	49
d) Spin-flop coupling	50
e) Rugosité interfaciale : Modèle de Malozemoff	50
f) Impuretés magnétiques	51
g) AF polycristallins	52
3.3) Propriétés dynamiques du couplage d'échange	52
a) Couplage d'échange statique vs. dynamique	53
b) Anisotropie rotatoire	55
c) Augmentation de l'amortissement	56
d) Modèle imagé des grains AF et de leur influence sur le couplage d'échange	57

## **Ferroélectricité** **59**

<b>IV) Généralités sur la ferroélectricité en couches minces</b>	<b>59</b>
4.1) Définition et caractéristiques d'un diélectrique	59
4.2) Ferroélectricité	61
4.3) Couches minces	63
4.4) Pérovskites	64

## **Références** **66**

Dans ce chapitre, nous allons dans un premier temps nous intéresser au formalisme théorique des propriétés magnétiques qui nous seront utiles pour la suite de notre étude. En particulier, nous décrirons les processus de dynamique de l'aimantation, en d'autres termes les mécanismes régissant La perméabilité est fortement dispersive dans le régime hyperfréquence et nécessite d'être détaillée, au contraire de la permittivité qui est relativement constante dans le régime microonde. Nous appliquerons ainsi ce formalisme au cas des couches minces ferromagnétiques, puis couplées antiferromagnétiquement, en détaillant en particulier leurs particularités et leur utilisation en dynamique. Enfin, nous décrirons brièvement les propriétés des matériaux diélectriques, notamment structurelles et de polarisation, tout en faisant un parallèle entre ferromagnétisme et ferroélectricité.

# Magnétisme

## I) Susceptibilité de couches minces ferromagnétiques

### 1.1) Susceptibilité, classification

Les matériaux magnétiques soumis à un champ magnétique extérieur  $H$  produisent une induction  $B$  à l'intérieur et à l'extérieur du matériau et ont par conséquent leur aimantation  $M$  modifiée. On peut décrire l'induction magnétique comme :

$$\vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}) \text{ exprimé dans le système SI} \quad (\text{Eq. 1})$$

$$\vec{B} = \vec{H} + 4\pi\vec{M} \text{ exprimé dans le système CGS} \quad (\text{Eq. 2})$$

$\mu_0$  correspond à la perméabilité du vide ( $4\pi \cdot 10^{-7}$  en SI, 1 en CGS) et  $M$  représente la densité volumique de moment magnétique dans le matériau (en A/m en SI, en emu.cm<sup>-1</sup> en CGS). Dans la suite du manuscrit, nous utiliserons le système SI, à l'exception de l'aimantation ou du champ magnétique. Ils sont exprimés en A/m, mais les unités CGS, les Oersted (Oe), sont largement usitées et bien plus représentatives (1 Oe =  $1000/4\pi$  A/m  $\approx$  80 A/m).

L'aimantation  $M$  est reliée au champ magnétique  $H$  par  $\chi$ , susceptibilité magnétique :

$$\vec{M} = \chi \vec{H} \quad (\text{Eq. 3})$$

On peut alors définir un tenseur de perméabilité  $\mu$  du matériau :

$$\vec{B} = (1 + \chi) \vec{H} = \mu \vec{H} \quad (\text{Eq. 4})$$

$\chi$  est la susceptibilité magnétique du milieu (grandeur microscopique) et  $\mu$  la perméabilité magnétique relative du matériau (grandeur macroscopique). Ces grandeurs caractérisent la

capacité du matériau à s'aimanter sous un champ magnétique et à canaliser les lignes de champ magnétiques environnantes.

A partir du comportement de la susceptibilité magnétique, on peut définir trois classes de propriétés magnétiques :

- Le diamagnétisme : la susceptibilité est très faible ( $|\chi| < 10^{-4}$ ), négative et indépendante de la température. Il en résulte une aimantation qui tend à s'opposer au champ magnétique. Il est intrinsèque à toute matière et souvent masqué dans les substances para et ferromagnétiques.

- Le paramagnétisme : la susceptibilité est faible ( $\chi < 10^{-2}$ ), positive et dépendante de la température ( $\chi = C/T$ ,  $C$  est une constante). Le moment magnétique atomique est non nul. L'aimantation tend à s'aligner avec le champ magnétique.

- Le ferromagnétisme : la susceptibilité est forte ( $\chi > 1$ ), positive et dépendante de la température ( $\chi = A/(T - T_c)$ ,  $A$  est une constante). Au dessous d'une température, dite de Curie ( $T_c$ ), il existe un couplage entre les atomes qui aligne tous les spins dans une direction unique (qui peut tout de même être perturbée par l'agitation thermique). Au dessus de la température de Curie, la substance devient paramagnétique.

## 1.2) Aimantation et système de coordonnées

Dans les matériaux ferromagnétiques, les spins sont très fortement couplés. On considère alors que la densité volumique de moments magnétiques est non nulle. Moyennée sur une échelle mésoscopique, elle correspond à l'aimantation  $M$ . Bien que la réalité soit plus complexe (division en domaines, inhomogénéités), nous décrivons le comportement de l'aimantation du matériau comme identique à celle d'un spin unitaire : c'est l'**approximation macrospin**.

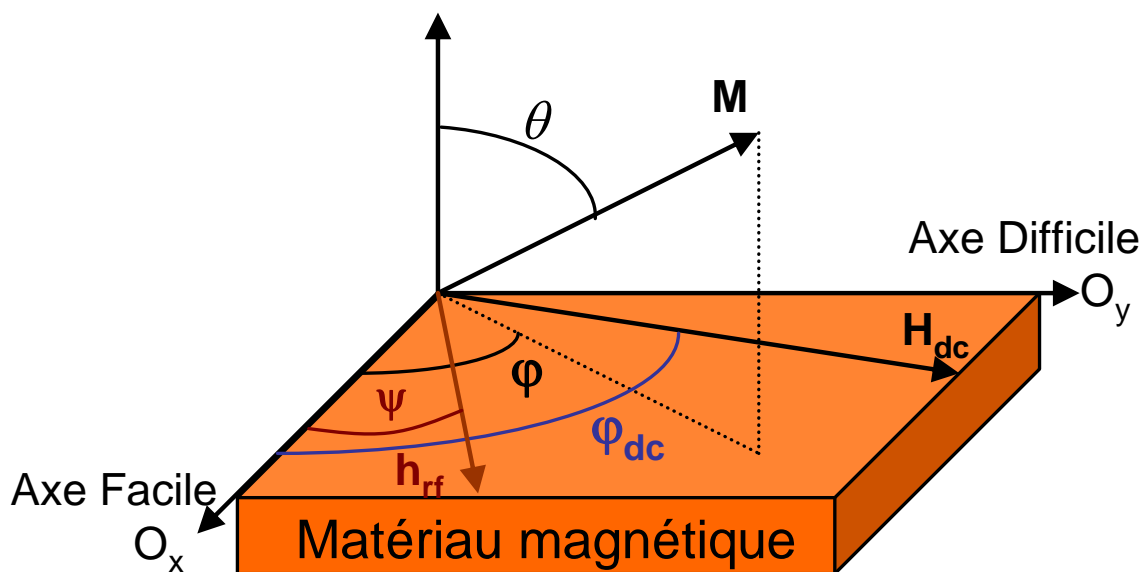


Figure 1 : configuration de l'aimantation et des énergies associées

Afin de décrire les propriétés de l'aimantation et les énergies présentes au sein du matériau, nous nous référerons au système de coordonnées décrit sur la figure 1. Pour repérer l'aimantation, nous utiliserons les coordonnées sphériques  $r\theta\varphi$  :

$$\vec{M} = \begin{bmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{bmatrix}_{xyz} = M_s \begin{bmatrix} \sin \theta \cos \varphi \\ \sin \theta \sin \varphi \\ \cos \theta \end{bmatrix}_{r\theta\varphi} \quad (\text{Eq.5})$$

### 1.3) Termes d'énergies

Nous décrivons ici les termes d'énergies magnétiques qui contribuent à l'enthalpie libre  $G$  du système et qui permettent de définir les états stables de l'aimantation (minima d'énergie).

#### a) *Energie d'échange d'Heisenberg*

C'est la base du ferromagnétisme, puisqu'elle décrit l'existence des forces de couplages entre les moments magnétiques, et qui pour une température inférieure à la température de Curie, domine l'agitation thermique en alignant les moments dans une même direction. Heisenberg a proposé de traduire ces interactions d'échange entre les spins de deux atomes voisins par une énergie d'échange proportionnelle au produit scalaire des spins  $S_i$  et  $S_j$  :

$$G_h = \sum_i \sum_j J_{ij} S_i S_j \quad (\text{Eq. 6})$$

$J_{ij}$  est l'intégrale d'échange entre deux spins voisins et caractérise le degré de recouvrement des orbitales des deux atomes. Si sa valeur est positive, les moments magnétiques tendent à s'aligner parallèlement entre eux. Il en résulte un ordre ferromagnétique ( $\uparrow\uparrow\uparrow$ ). Si sa valeur est négative, cela favorise une orientation anti-parallèle entre les moments magnétiques : c'est l'ordre antiferromagnétique ( $\uparrow\downarrow\downarrow$ ) ou ferrimagnétique ( $\uparrow\downarrow\uparrow$ ). L'énergie d'échange ne permet dans ces cas qu'une faible dispersion angulaire entre deux moments magnétiques adjacents. Nous justifions ici l'approximation du macrospin, c'est à dire que nous considérerons que cet écart peut être négligé et donc que les moments magnétiques du cristal ont un mouvement collectif.

#### b) *Energie de Zeeman*

L'interaction de l'aimantation avec un champ magnétique statique extérieur  $H_{dc}$  est traduite au travers du terme d'énergie de Zeeman. Elle est minimale lorsque les moments magnétiques sont alignés avec le champ magnétique. La densité volumique d'énergie magnétique s'écrit :

$$G_z = -\mu_0 \vec{H}_{dc} \vec{M}_s = -\mu_0 H_{dc} M_s (\sin \theta \cos \phi \cos \phi_{dc} + \sin \theta \sin \phi \sin \phi_{dc}) \quad (\text{Eq. 7})$$



### c) *Energie d'anisotropie*

Un matériau ferromagnétique monocristallin s'oriente plus facilement suivant certaines directions du cristal que l'on appelle **axes de facile aimantation**. Par opposition, les directions suivant lesquelles il est le plus difficile d'aligner l'aimantation, sont appelées **axes de difficile aimantation**. Il existe donc une anisotropie d'origine purement cristalline, dite magnétocristalline ( $K_1$ ).

Toutefois, dans un matériau polycristallin et plus spécifiquement dans le cas des couches minces ferromagnétiques, cette anisotropie disparaît rapidement lorsque la taille des grains diminue. Par contre, il existe souvent un axe d'anisotropie uniaxial dans le plan de la couche, avec une constante d'anisotropie  $K_u$ , cette fois « induite ». Par induit, on entend que l'origine de cette anisotropie résulte du procédé de fabrication (au cours du dépôt ou par traitement thermique après dépôt) et le plus souvent imputable à la présence d'un champ magnétique statique. Lorsque la taille des grains est suffisamment faible, ce terme induit supplante l'anisotropie magnétocristalline du matériau. On définit alors le champ effectif ( $H_k$ ) associé à l'énergie d'anisotropie uniaxiale ( $K_u$ ) par :

$$H_k = \frac{2K_u}{M_s} \quad (\text{Eq. 8})$$

En référence à la figure 1 ; nous plaçons l'axe de facile aimantation  $\vec{u}$  suivant  $O_x$  et l'énergie d'anisotropie induite s'exprime par :

$$G_k = \mu_0 K_u \left( 1 - \left( \frac{\vec{u} \cdot \vec{M}}{M_s} \right)^2 \right) = \frac{1}{2} \mu_0 M_s H_k (1 - \sin^2 \theta \cos^2 \phi) \quad (\text{Eq. 9})$$

### d) *Energie d'anisotropie de surface*

A la surface (ou interface) d'un matériau, il y a brisure de la symétrie, ce qui ajoute un terme d'anisotropie supplémentaire ( $K_s$ ), dite de surface. Ceci a été décrit pour la première fois par Louis Néel [1]. Cette brisure de symétrie entraîne une rupture de la continuité du champ cristallin ; le moment orbital n'est plus bloqué, une partie de l'aimantation bascule hors du plan. La conséquence principale est la diminution de l'aimantation planaire lorsque la couche devient suffisamment fine. Bien que cette anisotropie soit compliquée à modéliser, surtout dans le cas du ferromagnétisme itinérant\*, il a été montré expérimentalement que cette anisotropie existait [2]. Elle peut être très forte jusqu'à basculer l'aimantation hors du plan. Cette anisotropie s'exprime comme une diminution de l'aimantation planaire :

$$M_{eff} = M_s - \frac{2K_s}{M_s e_F} \quad (\text{Eq. 10})$$

---

\* Le magnétisme est dit itinérant lorsqu'il est créé par les électrons de conduction, au contraire du magnétisme localisé, porté par les atomes. C'est le cas des ferromagnétiques 3d, tels que le Co, le Ni et le Fe.

### e) *Energie magnétostatique – champs démagnétisant*

Lorsqu'un corps ferromagnétique de dimension finie est plongé dans un champ magnétique, il existe alors à la surface de ce corps une discontinuité de l'aimantation. Cette divergence n'étant pas physiquement possible, il y a création d'un champ magnétique de signe opposé au sein du corps appelé champ démagnétisant ( $H_d$ ), qui permet de compenser cette discontinuité de l'aimantation. Par analogie avec l'électrostatique, on considère souvent qu'il apparaît des charges magnétiques fictives sur les faces du corps générant ce champ démagnétisant (figure 2). Le champ démagnétisant a pour expression générale :

$$\vec{H}_d = -\vec{\overline{N}}\vec{M} \quad (\text{Eq. 11})$$

Où  $\overline{N}$  est le tenseur d'ordre 2 des coefficients démagnétisants, coefficients sans dimension.

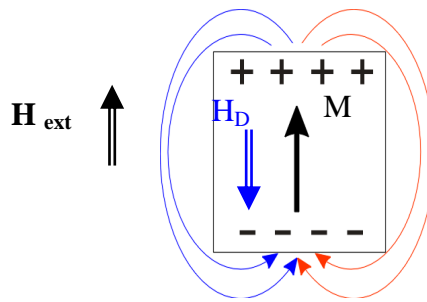


Figure 2 : *Illustration du champ démagnétisant au sein d'un corps ferromagnétique.*

Dans le cas d'une aimantation uniforme, c'est la limitation spatiale du corps qui est à l'origine des champs démagnétisants et qui induit une anisotropie supplémentaire. On parle alors d'anisotropie de forme. Le tenseur  $\vec{\overline{N}}$  est linéaire pour les formes géométriques simples. Des formules analytiques permettent d'en calculer les composantes, dans le cas des ellipsoïdes, par les formules de Osborn [3], ou dans le cas des parallélépipèdes par les formules d'Aharoni [4]. Le tenseur a la forme suivante :

$$\vec{\overline{N}} = \begin{bmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 12})$$

où  $N_x$ ,  $N_y$  et  $N_z$  sont les coefficients démagnétisant suivant les trois axes de symétrie du système. De plus, la somme des trois composantes doit être égale à 1 ( $4\pi$  en CGS). Dans le cas spécifique des couches minces à aimantation uniforme, en considérant l'axe  $z$  perpendiculaire au plan, l'aimantation est planaire, due à la très faible dimension de l'épaisseur en comparaison de la surface. Cela se traduit par des coefficients démagnétisant de la forme, dans le cas d'une couche mince « pleine tranche » (non structurée) :

$$N_x=N_y \approx 0 \text{ et } N_z=1 \quad (\text{Eq. 13})$$

La densité volumique d'énergie magnétostatique s'écrit :

$$G_d = -\frac{1}{2} \mu_0 \overrightarrow{M} \overrightarrow{H}_d = -\frac{1}{2} \mu_0 \overrightarrow{M} \overrightarrow{NM} \quad (\text{Eq. 14})$$

$$G_d = -\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 (N_x \sin^2 \theta \cos^2 \varphi + N_y \sin^2 \theta \sin^2 \varphi + N_z \cos^2 \theta) \quad (\text{Eq. 15})$$

### f) *Energie magnétostrictive*

Cette énergie traduit le couplage entre le réseau cristallin et le réseau de spin et correspond à une déformation élastique de la maille cristalline. La magnétostriction à saturation  $\lambda_s$  peut être positive lorsque le matériau s'allonge, ou négative dans le cas contraire. Elle dépend aussi des orientations cristallographiques du cristal. Il existe également le phénomène inverse : tout comme un champ magnétique peut déformer le cristal, une contrainte mécanique  $\sigma$  (tensile ou compressive) peut faire évoluer l'état d'aimantation du matériau et affecter la direction originale de l'aimantation. La densité d'énergie magnétostrictive inverse peut s'écrire, dans le cas simplifié d'une contrainte uniaxiale planaire :

$$G_s = -\frac{3}{2} \mu_0 \lambda_s \sigma \cos^2 (\phi - \phi_s) \sin^2 \theta \quad (\text{Eq. 16})$$

### g) *Energie d'échange antiferromagnétique*

Ici, nous introduisons une énergie qui n'est pas intrinsèque au matériau ferromagnétique, mais qui résulte du couplage interfacial avec un matériau antiferromagnétique, phénomène physique sur lequel nous reviendrons plus tard. De ce couplage résulte un champ d'échange unidirectionnel ( $H_{ex}$ ) et analogue à un champ magnétique statique au sein du corps ferromagnétique. On définit un angle  $\varphi_{ex}$  entre la direction de couplage et l'axe facile intrinsèque du corps ferromagnétique. Alors, la densité d'énergie volumique d'échange s'écrit :

$$G_{ex} = -\mu_0 \overrightarrow{M}_s \overrightarrow{H}_{ex} = -\mu_0 M_s H_{ex} \cos(\phi - \phi_{ex}) \sin \theta \quad (\text{Eq. 17})$$

## 1.4) *Dynamique de l'aimantation dans un ferromagnétique*

### a) *Description du modèle dynamique*

Nous nous intéressons ici au mouvement de précession de l'aimantation au cours du temps lorsque celle-ci est déstabilisée par rapport à sa position d'équilibre  $H_{eff}$  (figure 3). Comme tout système physique oscillant, l'aimantation va précesser autour de sa position d'équilibre à une certaine fréquence  $f_r$ , et y être ramenée via un terme dissipatif. La première formulation de la dynamique de l'aimantation a été donnée par Landau et Lifshitz en 1935 [5] :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = |\gamma_0| \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} + \frac{\lambda}{M_s^2} \vec{M} \wedge (\vec{M} \wedge \vec{H}_{eff}) \quad (\text{Eq. 18})$$

Le premier terme  $|\gamma_0| \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff}$ , aussi appelé précession de Larmor, correspond à la précession libre de l'aimantation.  $\gamma_0$  est le facteur gyromagnétique, exprimé en Hz/Oe. Il s'exprime :

$$\gamma_0 = \mu_0 \gamma = \mu_0 \frac{ge}{2m} \quad (\text{Eq. 19})$$

Avec  $e$  la charge et  $m$  la masse de l'électron, et  $g$  le facteur de Landé. Notons ici que contrairement au cas du spin isolé, le facteur de Landé n'est pas rigoureusement égal à 2, et dépend de la configuration électronique des atomes constituant le matériau. Il est généralement légèrement supérieur à 2 [6].

Le second terme, correspond à l'amortissement de l'aimantation, au travers d'une constante  $\lambda$  (en Hz). En effet, lorsque l'on écarte l'aimantation de sa position d'équilibre, celle-ci subit des forces de friction qui tendent à la ramener vers sa position d'équilibre, tout comme le feraient les forces de frottement visqueux agissant sur un pendule mécanique.

En 1955, Gilbert proposa une autre formulation de cette équation [7], qui est analogue à celle de Landau-Lifshitz, et valable dans la limite d'un faible amortissement (figure 3). C'est aujourd'hui la formule phénoménologique la plus utilisée, et connue sous le nom d'équation de Landau, Lifshitz et Gilbert (LLG). Ici, le couple d'amortissement est proportionnel à un facteur  $\alpha$  (sans unité), communément désigné coefficient d'amortissement ou damping factor.

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = |\gamma_0| \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M} \wedge \frac{d\vec{M}}{dt} \quad (\text{Eq. 20})$$

Comme illustré figure 3, il existe une différence géométrique entre le couple d'amortissement de Gilbert et celui de Landau-Lifshitz, mais il peut être montré mathématiquement une équivalence entre ces deux couples. La particularité de ces deux couples est de conserver la norme de l'aimantation.

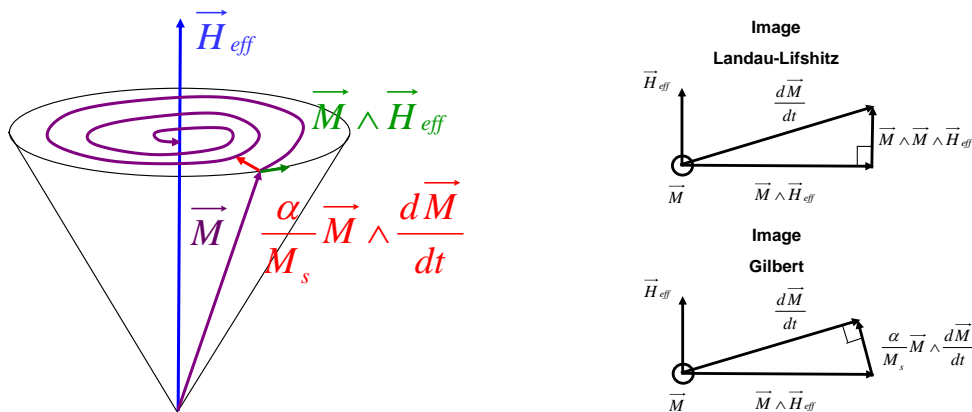


Figure 3 : Illustration du principe de la dynamique de l'aimantation et représentation des amortissements de Landau-Lifshitz et de Gilbert.

Notons qu'il existe également une troisième formulation, dite de Bloch-Bloembergen [8], qui a la particularité de prendre en compte la variation de la norme de l'aimantation en distinguant les temps de relaxation longitudinale ( $T_1$ ) et transverse ( $T_2$ ). Elle est donc bien utile pour décrire tout phénomène de décohérence spatiale qui peut conduire à une relaxation transverse plus rapide et sans conservation de la norme totale de l'aimantation (par exemple les processus à plusieurs magnons) :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = |\gamma_0| \vec{M} \wedge \vec{H}_{eff} - \frac{M_x \vec{u}_x + M_y \vec{u}_y}{T_2} - \frac{M_z - M_s}{T_1} \vec{u}_z \quad (\text{Eq. 21})$$

Quelles que soient les formulations, l'amortissement résulte du couplage entre le mode de précession uniforme de l'aimantation et les autres degrés de liberté du système (magnons dégénérés, phonons, électrons de conduction, etc...). Mais sa description reste phénoménologique car il est difficile de séparer et d'identifier les différentes contributions à cet amortissement, d'autant plus que ces contributions sont interdépendante et sont encore mal comprises. Nous utiliserons par la suite le modèle LLG, qui reste aujourd'hui le plus répandu pour décrire les processus de dynamique de l'aimantation dans l'hypothèse macrospin, étant donné sa simplicité d'exploitation et surtout sa bonne vérification expérimentale, comme nous le verrons par la suite.

### ***b) Approximation linéaire en petit signaux***

Bien que vectorielle et non linéaire, l'équation LLG peut être simplifiée et linéarisée. Pour cela, on se place dans le cadre de faibles perturbations de l'aimantation par exemple sus l'action d'un champ radiofréquence (RF). On ne considère alors que la perturbation du champ effectif par le champ exciteur  $\mathbf{h}(r,t)$ , de faible amplitude et harmonique, qui va provoquer une oscillation d'amplitude modérée de l'aimantation  $\mathbf{m}(r,t)$  autour de sa position d'équilibre  $\mathbf{M}_{eq}$ .

$$\vec{M} = \vec{M}_{eq} + \vec{m}(r,t) = \vec{M}_{eq} + \vec{m}(r) e^{-i2\pi f t} \quad (\text{Eq. 21})$$

$$\vec{H} = \vec{H}_{eff} + \vec{h}(r,t) = \vec{H}_{eff} + \vec{h}(r) e^{-i2\pi f t} \quad (\text{Eq. 22})$$

Dans ces conditions, la susceptibilité dynamique magnétique est définie par :

$$\vec{m} = \vec{\chi} \vec{h} \quad (\text{Eq. 23})$$

Afin d'être plus général, on peut exprimer le champ effectif en fonction des énergies magnétiques à travers le gradient d'enthalpie du système :

$$\vec{H}_{eff} = -\frac{1}{\mu_0} \vec{\nabla}_M G \quad (\text{Eq. 24})$$

Le passage l'équation LLG en coordonnées sphériques permet de simplifier sa mise en forme matricielle. On exprime alors la perturbation de l'aimantation en fonction des variations élémentaires des angles polaires  $\Delta\theta$  et  $\Delta\phi$  :

$$\frac{\partial\theta}{\partial t} = -\frac{\gamma}{M_s \sin\theta} \frac{\partial G}{\partial\phi} - \alpha \sin\theta \frac{\partial\phi}{\partial t} + \gamma(-h_x \sin\phi + h_y \cos\phi) \quad (\text{Eq. 25})$$

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} = \frac{\gamma}{M_s \sin\theta} \frac{\partial G}{\partial\theta} - \alpha \sin\theta \frac{\partial\theta}{\partial t} - \gamma \left( h_x \cos\phi \frac{\cos\theta}{\sin\theta} + h_y \frac{\cos\theta}{\sin\theta} \right) \quad (\text{Eq. 26})$$

$$\vec{m} = M_s \begin{bmatrix} \frac{\partial\vec{M}}{\partial\theta} & \frac{\partial\vec{M}}{\partial\phi} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{bmatrix} = M_s \begin{bmatrix} \cos\theta \cos\phi & -\sin\theta \cos\phi \\ \cos\theta \sin\phi & \sin\theta \cos\phi \\ -\sin\theta & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 27})$$

Les variations de l'enthalpie libre sont au premier ordre nulles, car l'on suppose l'aimantation en quasi équilibre (les premières dérivées donnent la position de l'équilibre). On effectue alors un développement limité au deuxième ordre, pour de petites variations des angles polaires :

$$G(\theta, \phi) \cong G_{eq} + \frac{1}{2} G_{\theta\theta} \Delta\theta^2 + \frac{1}{2} G_{\phi\phi} \Delta\phi^2 + G_{\theta\phi} \Delta\theta \Delta\phi \quad (\text{Eq. 28})$$

avec  $G_{ij}$  les dérivées angulaires secondes de l'énergie par rapport aux angles polaires et  $G_{eq}$  le terme d'énergie constant qui correspond à la position d'équilibre de l'aimantation  $M_{eq}(\theta_{eq}, \phi_{eq})$ . A partir des dérivées angulaires :

$$\frac{\partial G}{\partial\theta} = G_{\theta\theta} \Delta\theta + G_{\theta\phi} \Delta\phi \quad (\text{Eq. 29})$$

$$\frac{\partial G}{\partial\phi} = G_{\phi\phi} \Delta\phi + G_{\theta\phi} \Delta\theta \quad (\text{Eq. 30})$$

On peut donc réécrire l'équation LLG sous sa forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} \frac{G_{\theta\theta} + i\alpha z}{\sin\theta_{eq}} & \frac{G_{\theta\phi} - iz}{\sin\theta_{eq}} \\ \frac{G_{\theta\phi} + iz}{\sin\theta_{eq}} & \frac{G_{\phi\phi} + i\alpha z \sin\theta_{eq}}{\sin\theta_{eq}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{bmatrix} = M_s \begin{bmatrix} \cos\theta_{eq} \frac{\cos\theta_{eq}}{\sin\theta_{eq}} & \sin\theta_{eq} \frac{\cos\theta_{eq}}{\sin\theta_{eq}} \\ -\sin\theta_{eq} & \cos\theta_{eq} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 31})$$

$$\text{Avec } z = \frac{2\pi f M_s}{\gamma_0} \quad (\text{Eq. 32})$$

On peut alors calculer les variations des angles polaires et ainsi donner une expression de la susceptibilité :

$$\begin{bmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{bmatrix} = \frac{M_s}{\Delta} \begin{bmatrix} \frac{G_{\phi\phi}}{\sin\theta_{eq}} + i\alpha z \sin\theta_{eq} & \frac{-G_{\theta\phi}}{\sin\theta_{eq}} + iz \\ \frac{-G_{\theta\phi}}{\sin\theta_{eq}} - iz & \frac{G_{\theta\theta} + i\alpha z}{\sin\theta_{eq}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos\theta_{eq} \frac{\cos\theta_{eq}}{\sin\theta_{eq}} & \sin\theta_{eq} \frac{\cos\theta_{eq}}{\sin\theta_{eq}} \\ -\sin\theta_{eq} & \cos\theta_{eq} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 33})$$

$$\Delta = \frac{G_{\theta\theta}G_{\phi\phi}}{\sin^2\theta_{eq}} - \frac{G_{\theta\phi}^2}{\sin^2\theta_{eq}} + i\alpha z \left( \frac{G_{\phi\phi}}{\sin^2\theta_{eq}} + G_{\theta\theta} \right) - (1 + \alpha^2) z^2 \quad (\text{Eq. 32})$$

On reconnaît ici une forme du type :

$$\begin{bmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{bmatrix} = \chi_{\Delta\theta,\Delta\phi} \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 33})$$

Qui permet de définir une expression matricielle générale de la susceptibilité magnétique :

$$\vec{m} = M_s \begin{bmatrix} \cos\theta \cos\phi & -\sin\theta \cos\phi \\ \cos\theta \sin\phi & \sin\theta \cos\phi \\ -\sin\theta & 0 \end{bmatrix} \chi_{\Delta\theta,\Delta\phi} \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \end{bmatrix} = \vec{\chi} \vec{h} \quad (\text{Eq. 34})$$

Cette équation est tout à fait générale et permet d'obtenir la fréquence de résonance d'un corps ferromagnétique quelconque. On obtient ainsi la fréquence de résonance ferromagnétique ( $f_{FMR}$ ) en calculant la solution non triviale du système, autrement dit lorsque le déterminant  $\Delta$  s'annule.

$$f_{FMR} = \frac{\gamma_0}{2\pi M_s} \sqrt{\frac{G_{\theta\theta}G_{\phi\phi} - G_{\theta\phi}^2}{(1 + \alpha^2)\sin^2\theta_{eq}} + \frac{\alpha^2}{(1 + \alpha^2)} \left( \frac{G_{\phi\phi}}{\sin^2\theta_{eq}} + G_{\theta\theta} \right)} \quad (\text{Eq. 35})$$

On peut, d'autre part, calculer la constante de temps d'amortissement des oscillations ( $\tau$ ), utilisée par exemple lors de mesures temporelles :

$$\tau = \frac{M_s (1 + \alpha^2)}{\gamma_0 \alpha \left( \frac{G_{\phi\phi}}{\sin^2\theta_{eq}} + G_{\theta\theta} \right)} \quad (\text{Eq. 36})$$

### c) Perméabilité dynamique de couches minces ferromagnétiques

A présent, nous parlerons de la perméabilité  $\mu(f)$ , qui est analogue à la susceptibilité  $\chi(f)$  et symbolise le rapport entre l'induction magnétique et le champ magnétique.

Nous pouvons maintenant simplifier cette équation LLG dans le cadre des couches minces où l'aimantation planaire impose que  $\theta_{eq} = \pi/2$ . Donc, si l'on applique le champ hyperfréquence dans le plan et qu'il forme un angle  $\psi$  avec l'axe facile  $O_x$  (figure 2), la

perméabilité suivant la direction du champ excitateur s'écrit sous sa forme complexe la plus générale :

$$\mu(f) = 1 + \frac{M_s^2 (G_{\theta\theta} + i\alpha z)}{G_{\theta\theta}G_{\phi\phi} - G_{\theta\phi}^2 - (1 + \alpha^2)z^2 + i\alpha z(G_{\theta\theta} + G_{\phi\phi})} \sin^2(\psi - \phi_{eq}) \quad (\text{Eq. 37})$$

A présent si nous simplifions en supposant  $\alpha \ll 1$ , alors  $(1 + \alpha^2) \approx 1$  et  $\alpha z \ll G_{\theta\theta}$ , nous pouvons réécrire la perméabilité :

$$\mu(f) = 1 + \left(\frac{\gamma_0}{2\pi}\right)^2 \frac{G_{\theta\theta}}{f_{FMR}^2 - f^2 + i \frac{\alpha \gamma_0 f}{2\pi M_s} (G_{\theta\theta} + G_{\phi\phi})} \sin^2(\psi - \phi_{eq}) \quad (\text{Eq. 38})$$

Et exprimer la fréquence de résonance magnétique ( $f_{FMR}$ ) sous la forme :

$$f_{FMR} = \frac{\gamma_0}{2\pi M_s} \sqrt{G_{\theta\theta}G_{\phi\phi} - G_{\theta\phi}^2} \quad (\text{Eq. 39})$$

#### d) *Excitation dynamique suivant l'axe difficile*

En considérant que nous n'avons affaire qu'à des couches minces à anisotropie uniaxiale ou unidirectionnelle, la direction d'équilibre de l'aimantation est orientée suivant l'axe facile (axe  $O_x$ ). On suppose de plus, que si un champ extérieur statique ( $H_{dc}$ ) est appliqué, ce sera également le long de la direction facile.

$$\text{Donc : } \varphi_{eq} = \varphi_{dc} = 0$$

Ce qui donne :

$$G_{\theta\theta} = M_s (H_k + H_{dc} + 4\pi M_s) \quad (\text{Eq. 40})$$

$$G_{\phi\phi} = M_s (H_k + H_{dc}) \quad (\text{Eq. 41})$$

$$G_{\theta\phi} = 0 \quad (\text{Eq. 42})$$

On obtient finalement les formules usuelles :

$$\mu(f) = 1 + \left(\frac{\gamma_0}{2\pi}\right)^2 \frac{M_s (H_k + H_{dc} + M_s)}{f_{FMR}^2 - f^2 + i\alpha \frac{\gamma_0}{2\pi} f (2H_k + 2H_{dc} + M_s)} \sin^2(\psi) \quad (\text{Eq. 42})$$

$$f_{FMR} = \frac{\gamma_0}{2\pi} \sqrt{(H_k + H_{dc} + M_s)(H_k + H_{dc})} \quad (\text{Eq. 43})$$



On voit bien ici que lorsque le champ hyperfréquence est appliqué suivant l'axe facile ( $\psi = 0$ ), alors la perméabilité est minimale et vaut 1. En revanche, si le champ hyperfréquence est appliqué suivant l'axe difficile ( $\psi = \pi/2$ ), alors la perméabilité est maximale, ce qui est la propriété recherchée pour les applications RF.

Nous allons à présent détailler les grandeurs qui nous intéresseront par la suite dans nos études expérimentales. Tout d'abord, l'expression dynamique de la perméabilité a le profil d'une équation Lorentzienne, ce qui nous sera particulièrement utile pour ajuster les propriétés expérimentales, avec  $\Delta f$  la largeur de raie à mi-hauteur et  $A$  son amplitude :

$$\mu(f) = 1 + \frac{A}{f_{FMR}^2 - f^2 + if\Delta f} \quad (\text{Eq. 44})$$

Comme toute expression complexe, la perméabilité se dissocie en parties réelles ( $\mu'(f)$ ) et imaginaires ( $\mu''(f)$ ), comme montré en figure 4. La partie réelle  $\mu'(f)$  représente la capacité du matériau à canaliser les lignes de champ magnétique. La partie imaginaire  $\mu''(f)$  représente les pertes dissipées par énergie joule dans le matériau.

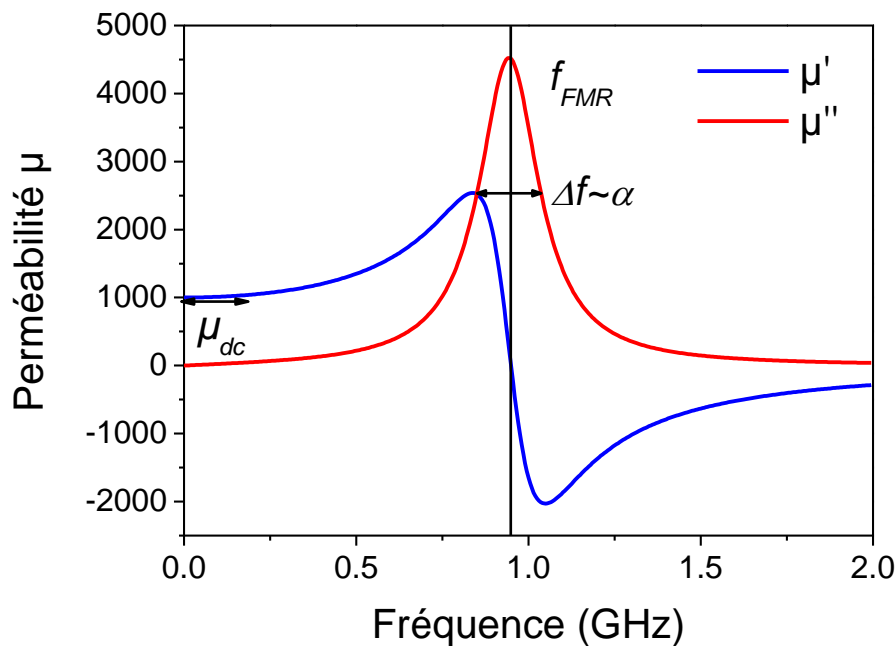


Figure 4 : Illustration des parties réelle  $\mu'$  et imaginaire  $\mu''$  de la perméabilité dynamique selon l'axe difficile, pour des paramètres typiques du Permalloy :  $\gamma/2\pi=28\text{GHz}\cdot\text{T}^{-1}$ ,  $\mu_0 M_s=1\text{T}$ ,  $H_k=50\text{e}$ ,  $H_{dc}=5\text{ Oe}$  et  $\alpha=0.007$

En extrapolant la perméabilité à basse fréquence ( $f = 0$ ), on retrouve bien l'expression connue de la perméabilité quasi-statique  $\mu_{dc}$  (Eq. 45), qui reste relativement constante en fréquence, jusqu'à l'apparition des pertes et l'augmentation de  $\mu''$ . On peut d'ores et déjà constater que plus la fréquence de résonance est élevée, plus la perméabilité sera faible, ce qui se comprend aisément puisque la force de rappel exercée sur l'aimantation est plus importante. Toutefois, cela peut être compensé par l'utilisation d'un matériau à fort  $M_s$  qui autorisera l'accès à de très hautes amplitudes de perméabilité.

A la fréquence de résonance magnétique, les pertes sont maximum, d'autant plus élevée que  $\alpha$  est petit (Eq. 46). Enfin, on peut remarquer que plus l'aimantation et l'anisotropie du système seront grands, plus la largeur de raie à mi-hauteur sera importante (Eq. 47).

$$\mu_{dc} = 1 + \frac{M_s}{H_{dc} + H_k} \quad (\text{Eq. 45})$$

$$\mu_{\max}^* \approx \frac{\gamma_0}{2\pi} \frac{M_s}{\alpha f_{FMR}} \quad (\text{Eq. 46})$$

$$\Delta f = \alpha (2H_{dc} + 2H_k + M_s) \quad (\text{Eq. 47})$$

## **II) Autres processus contribuant à la dynamique de l'aimantation**

Nous allons lister ici, sans nécessairement les détailler, d'autres contributions à la dynamique de l'aimantation, qui peuvent jouer un rôle dans de l'augmentation de l'amortissement du système ou faire apparaître des pics de résonances parasites, notamment dans le cadre de nos études.

### **2.1) Courants de Foucault**

Il s'agit de la contribution la plus classique dont l'origine est purement électromagnétique. C'est aussi une contribution des plus pénalisantes d'un point de vue applicatif. En effet, dans un matériau métallique, ce qui est le cas des ferromagnétiques, un champ magnétique variable génère un champ électromoteur qui induit des boucles de courants afin de s'opposer aux variations de flux magnétique : ce sont les courants de Foucault. Ces boucles se créent sur une épaisseur caractéristique  $\delta$ , appelée épaisseur de peau, et créent alors un champ induit au centre du matériau dont le sens est opposé au champ extérieur. Il s'en suit donc une non pénétration du champ extérieur au cœur du matériau (« bouchon de flux »). Par conséquent le champ interne au matériau magnétique est diminué. Le flux n'est conduit qu'à la surface du matériau sur une épaisseur  $\delta$ , comme illustré figure 5. Ce phénomène est amplifié dans le cas des matériaux magnétiques, qui possèdent une perméabilité  $\mu$  dispersive en fréquence, on parle alors de d'effet de peau extraordinaire (figure 6.a).

Le modèle électromagnétique donne alors à partir des équations de Maxwell la perméabilité dynamique correspondante ( $\mu_{CF}$ ), pour une couche mince ferromagnétique d'épaisseur  $e_F$  [9, 10]:

$$\mu_{CF} = \mu_{LLG} \frac{(1-i)\delta e^{\frac{(1+i)e_F}{\delta}} - 1}{e_F \frac{(1+i)e_F}{\delta} + 1} \quad (\text{Eq. 48})$$

Avec  $\mu_{LLG}$  la perméabilité (complexe) intrinsèque au matériau. L'épaisseur de peau est donnée:

$$\delta = \sqrt{\frac{\rho}{\pi f \mu_0 \mu_{LLG}}} \quad (\text{Eq. 49})$$

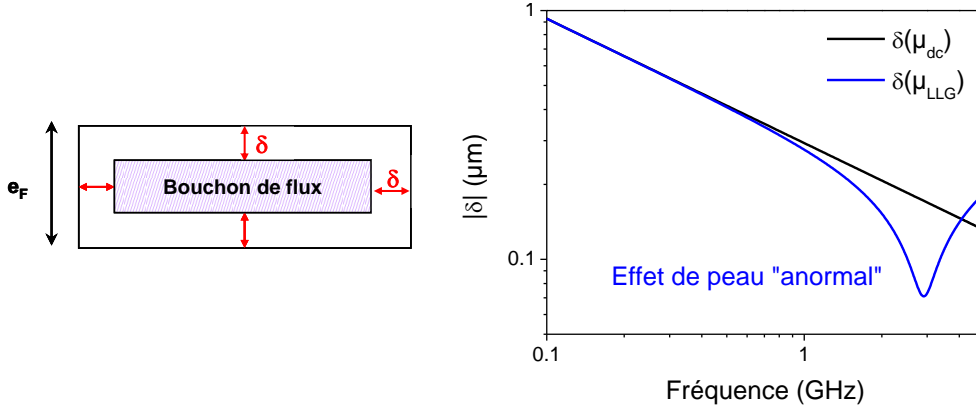


Figure 5 : Représentation schématique de l'effet de peau dans une couche mince ferromagnétique, et représentation de l'effet de peau « anormal » pour d'une couche ferromagnétique ( $\delta(\mu_{LLG})$ ) et l'effet de peau « classique » d'une même couche à perméabilité constante ( $\delta(\mu_{dc})$ ).

On peut de plus calculer la fréquence de résonance pour laquelle la dissipation est maximale ( $f_{CF}$ ) assimilée à une fréquence de résonance des courants de Foucault, à dissocier de la FMR, et qui en première approximation (perméabilité statique, figure 6.a) s'écrit :

$$f_{CF} \approx \frac{4\rho}{\pi e_F^2 \mu_0 \mu_{dc}} \quad (\text{Eq. 50})$$

On note que la dépendance de  $f_{CF}$  avec l'épaisseur dans la couche ferromagnétique est quadratique. C'est la raison pour laquelle il est impératif de réduire suffisamment l'épaisseur des couches ferromagnétiques à étudier en dynamique pour que la résonance ferromagnétique elle-même ne soit pas écartée par celle des courants de Foucault.

Nous avons illustré ce phénomène de courant de Foucault et ses conséquences sur la perméabilité figure 6. Pour cela, nous partons d'une couche de  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  avec d'épaisseur de 500  $\mu\text{m}$  et une résistivité 20  $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ , ayant une perméabilité modifiée par les courants de Foucault ( $\mu_{CF}$ ). Nous y comparons un spectre de perméabilité du même matériau, mais possédant une perméabilité constante (CF) (figure 6.a). On voit nettement  $f_{CF}$  et la contribution de la perméabilité. On le compare figure 6.b à la perméabilité intrinsèque de  $\text{FeCo}$  ( $\mu_{LLG}$ ). On remarque bien alors sur la partie imaginaire  $\mu_{CF}''$  une forte baisse de l'amplitude (moins de matériau actif), ainsi que des pertes basse fréquences beaucoup plus élevées. Notons ici que si les courants de Foucault ajoutent des pertes, ils ne contribuent pas, à proprement parler, à l'amortissement du système ferromagnétique [10].

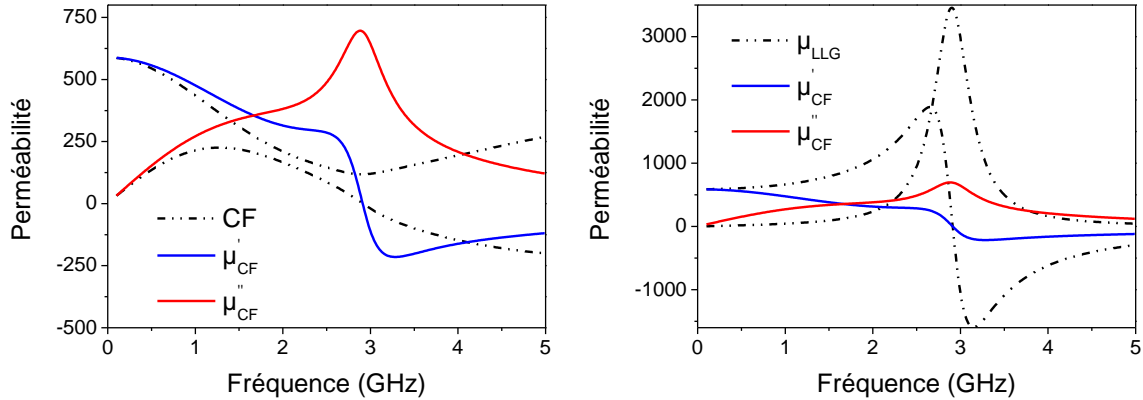


Figure 6 : Représentation de l'effet de peau dans une couche mince ferromagnétique de FeCo avec  $e_F=500$  nm et  $\sigma=20 \mu\Omega\text{cm}$ . Comparaison courant de Foucault « anormaux » à des courants de Foucault « classiques » à perméabilité constante (a) et à la perméabilité intrinsèque de FeCo (b).

## 2.2) Résonance de domaine

Jusqu'à présent, nous avons considéré des matériaux strictement mono-domaine, dans l'approximation macrospin. En réalité, afin de minimiser l'énergie démagnétisante, les matériaux ferromagnétiques se subdivisent en domaines, comme montré figure 7. De plus amples informations sur ce phénomène sont détaillés par Kittel dans [11]. Tant que l'échantillon est assez grand, ce phénomène est négligeable. Cependant, à l'échelle des microstructures, cette contribution n'est plus négligeable. En effet, les parois dissociant deux domaines adjacents peuvent aussi être soumises au champ RF, et réagissent en « battant » autour de leur position initiale suivant l'excitation. Ceci a fait l'objet d'une étude détaillée dans la thèse de Rachid Hida [12] dans le cadre de la micro-structuration de Permalloy ( $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ). On est donc le plus souvent dans une problématique double combinant rotation d'aimantation et mouvements de parois dès lors que l'on s'intéresse aux microstructures ou microsystemes. Dans l'absolu, il serait nécessaire de résoudre en parallèle le cas d'un oscillateur équivalent associé à la rotation de moments, et celui associé au déplacement de parois. Bien qu'il n'existe pas de solution analytique simple à la dynamique de domaine, il est possible de calculer une fréquence de résonance à partir d'une équation harmonique simple contenant un terme d'amortissement, une masse équivalente et une constante de raideur de paroi. Les calculs approximatifs peuvent se trouver dans [12], et permettent de bien estimer la fréquence de résonance des domaines de fermeture, en particulier. Cette contribution peut être pénalisante à toute application inductive car elle introduit des pertes basse fréquence non négligeables, et proportionnelles à la densité de domaines de fermeture, réduisant la gamme de fréquence à faible perte et forte perméabilité.

Ici, le couplage d'échange antiferromagnétique, sur lequel nous reviendrons plus tard, présente un grand intérêt. En effet, du fait de l'énergie unidirectionnelle créée par ce couplage, l'aimantation polarise dans une seule direction, comme sous l'action d'un champ magnétique statique. Si ce couplage est suffisamment fort, il y a alors absence de domaines.

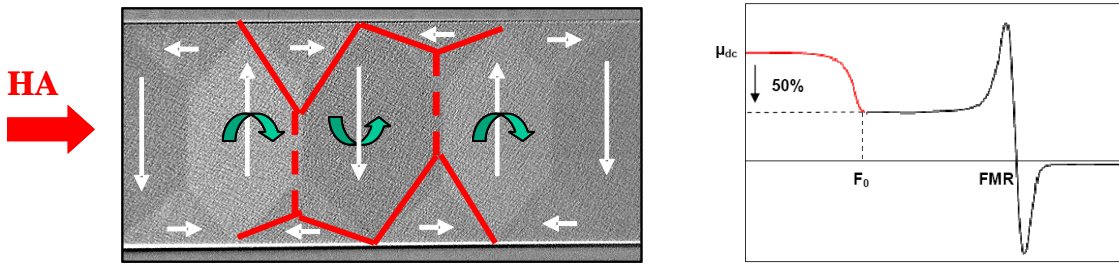


Figure 7 : Déplacement d'une paroi de domaine à  $90^\circ$  sous l'action d'un champ appliqué suivant l'axe difficile, et illustration par un spectre dynamique associé.

### 2.3) Propagation d'onde de spin

Dans les parties précédentes, nous avons décrit l'aimantation comme uniforme (à l'exception de l'aparté sur les domaines), négligeant ainsi les contributions à la dynamique de l'interaction d'échange. Si l'on suppose que deux spins voisins peuvent osciller avec des phases différentes alors il y a possibilité de propager des ondes de spin (ou encore magnons) parallèles à la direction de l'aimantation à l'équilibre (onde de spin longitudinale) ou bien perpendiculaire (onde de spin transverse). Plus de détails sur le calcul d'ondes de spin sont donnés dans [13] où les conditions de la levée de dégénérescence des vecteurs d'onde sont précisées.

Les ondes de spins peuvent avoir un rôle non négligeable dans des microstructures magnétiques excitées dans le domaine des hyperfréquences. En effet, leurs relations de dispersion engendrent des effets qui sont du même ordre de grandeur que la résonance ferromagnétique que l'on vient de voir. Ces ondes de spin peuvent donc, dans certaines géométries, être excitées et aboutir dans la pratique à un élargissement de la réponse totale du pic de résonance gyromagnétique du matériau. Ceci a été décrit par Guillaume Council dans sa thèse [14] et servira de base de discussion dans le cas particulier des lignes coplanaires, où l'impact dimensionnel n'est pas négligeable.

### 2.4) Diffusion d'électrons itinérants par des ondes de spin

C'est un processus qui couple les ondes de spin aux excitations électron-trou. Un magnon d'énergie  $h\omega$  peut être absorbé par un électron de conduction qui sera ensuite diffusé vers les différents états électroniques disponibles (dans la même bande ou alors vers une autre bande) dans une bande de largeur  $h\omega$  autour du niveau de Fermi (condition de conservation de l'énergie). Il peut y avoir, par exemple, la diffusion d'une onde de spin par un électron de conduction, suivie du renversement du spin de ce dernier lors du processus de collision (comme cela peut se produire lors d'une diffusion électron-phonon en présence d'interaction spin-orbite). Cette relaxation des électrons génère des fluctuations du vecteur d'onde inversement proportionnelles au libre parcours moyen. Le calcul du temps de relaxation s'effectue en considérant le recouvrement des fonctions d'ondes de l'électron pour les différents niveaux accessibles. Dans l'approche simplifiée de Berger [15], on trouve un taux de relaxation proportionnel à la fréquence, ce qui donne une largeur de raie linéaire en

fréquence compatible avec la formulation de Gilbert d'un paramètre  $\alpha$  indépendant de la fréquence.

## 2.5) Diffusion à deux magnons

Une autre cause fréquente d'élargissement de la largeur de raie est celle des inhomogénéités magnétiques au sein du système. Celles-ci peuvent provenir soit des impuretés ou des défauts, soit des variations de l'anisotropie dans le cas d'un échantillon polycristallin, ou encore d'une non-uniformité de l'aimantation due à la rugosité de surface. Le champ d'équilibre ne sera donc plus homogène sur tout le volume de l'échantillon. On peut le voir en quelque sorte comme une grandeur fluctuant dans l'espace. En réalité comme l'a montré R.D. McMichael [16] ces inhomogénéités ne peuvent pas être considérées comme indépendantes à cause du caractère longue portée de l'interaction dipolaire. Ceci a pour effet de réduire la valeur de l'élargissement inhomogène.

Si l'on introduit des impuretés magnétiques, il y a alors possibilité de diffuser les magnons sur cette impureté : c'est le processus de diffusion à deux magnons. Le vecteur d'onde du magnon est alors diffusé sur un mode de vecteur d'onde plus élevé, mais avec conservation de l'énergie. Cela a pour conséquence d'augmenter la largeur de raie, d'autant plus que la couche magnétique est fine. Ceci a pu être mis en avant grâce aux couches minces, et a été prédit par Arias et Mills [17]. Il a aussi été montré que cet effet est très présent dans les systèmes couplés par échange où le phénomène est principalement interfacial [18].

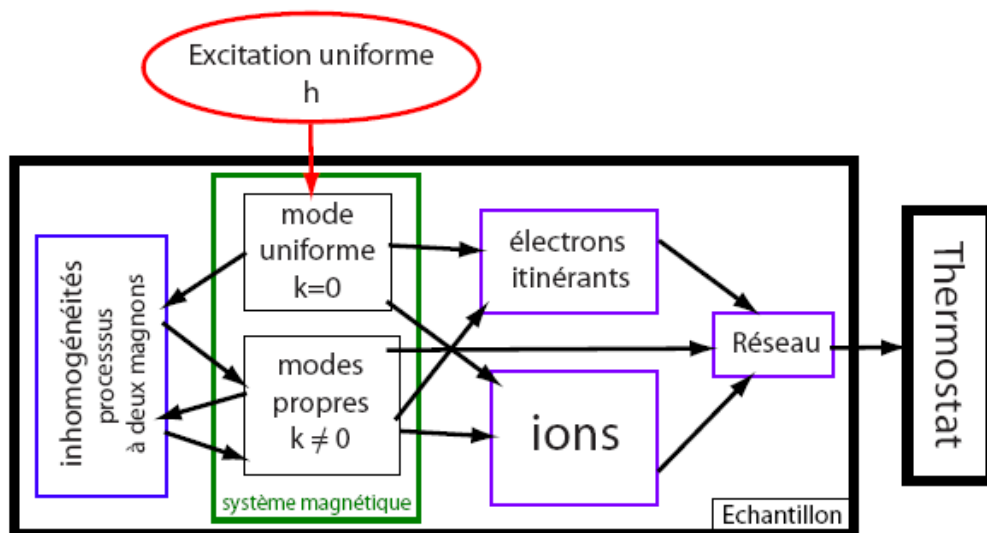


Figure 8 : Schéma des principaux mécanismes de relaxation dans un système ferromagnétique, ainsi que les flux d'énergie entre les différents degrés de liberté du système.

### III) Couplage antiferromagnétique

En 1956, Meiklejohn et Bean [19, 20] observèrent que des particules ferromagnétiques de cobalt Co recouvertes de leur oxyde naturel CoO (antiferromagnétique) induisaient une anisotropie supplémentaire dans le matériau ferromagnétique. C'est à cette anisotropie supplémentaire qu'est associée la notion d'énergie de couplage d'échange. Cette énergie a la particularité d'être d'une part interfaciale - donc dépendante de l'aimantation - et d'autre part unidirectionnelle, c'est à dire qu'elle dissymétrise les valeurs de champ de retournement de l'aimantation.

De cette découverte ont découlé de nombreuses applications en technologie couches minces en termes de miniaturisation, de robustesse, de stabilisation thermique de divers composants magnétiques, notamment dans le domaine du stockage de l'information. Comme illustré en Figure 9, il devient possible de stabiliser la direction de l'aimantation dans une seule direction quelque soit son histoire magnétique. Cette propriété peut être alors mise à profit de dispositifs de la spintronique, comme les vannes de spin ou les jonctions tunnel magnétiques, nécessitant un état d'aimantation de référence.

Du constat de cette anisotropie supplémentaire, finalement analogue à un champ magnétique statique externe, est née l'idée de l'utilisation de ce phénomène pour des applications dynamiques [21]. On peut en effet par ce biais augmenter l'anisotropie du système ferromagnétique comme montré précédemment. Il est alors possible de repousser la fréquence de résonance ferromagnétique à plus haute fréquence que celle naturellement observable dans les ferromagnétiques seuls, sans application de champ magnétique externe. C'est sans conteste une avancée majeure pour les dispositifs magnétiques intégrés visant des fréquences d'application entre 3 et 10 GHz. Ceci a par ailleurs fait l'objet de la thèse de Yann Lamy [22] ; thèse à la quelle ce travail fait suite.

Nous reviendrons dans cette partie sur une modélisation simple et phénoménologique du couplage d'échange et ses conséquences sur des cycles statiques et dynamiques. Nous citerons aussi pour mémoire les différents modèles relatifs au couplage d'échange. Notons que de plus amples informations sur le couplage antiferromagnétique d'une manière générale se trouvent dans deux articles de revue de J. Noguès et I. K. Schuller [23] et de Berkowitz et Takano [24].

#### 3.4) Généralités

Les corps antiferromagnétiques ont une configuration où deux spins voisins sont couplés antiparallèlement résultant d'une intégrale d'échange  $J_{ij}$  négative. Par analogie aux corps ferromagnétiques, il existe une température  $T_N$ , dite de Néel, pour laquelle le matériau devient paramagnétique. Ce phénomène a été très largement étudié par Louis Néel, prix Nobel en 1970. Il existe de plus une température  $T_B$ , dite de blocage, pour laquelle le couplage d'échange interfacial entre ferromagnétique et antiferromagnétique est supprimé à cause de l'agitation thermique. La température de blocage est inférieure à celle de Néel et sa valeur dépend fortement de l'épaisseur et de la taille des grains du corps antiferromagnétique.

Le principe de base du couplage d'échange interfacial F/AF est illustré figure 9. Il suppose qu'à l'interface F/AF, un couplage d'Heisenberg se crée entre les spins F et AF. Ce couplage étant supposé ferromagnétique, les spins F vont donc naturellement s'orienter en direction de la dernière rangée de spins AF (1). Lorsque l'on applique un champ magnétique, les spins du ferromagnétique vont rester bloqués dans la direction des spins AF, jusqu'à ce que le champ soit suffisamment puissant pour retourner les spins F (3,4). Le matériau se comporte donc comme si il y avait un champ effectif interne additionnel et unidirectionnel : le champ d'échange  $H_{ex}$ .

Cette description simpliste donne une vision qualitative du phénomène. Toutefois, le couplage d'échange dépend de beaucoup de paramètres, comme les anisotropies respectives des corps F et AF, le caractère structural, les défauts cristallins, la rugosité d'interface... et fait l'objet d'études, aussi bien théoriques qu'expérimentales, dans de nombreux laboratoires. Ainsi, plusieurs modèles ont été proposés et approchent bien la réalité (les principaux seront détaillés brièvement par la suite), mais le couplage d'échange interfacial reste encore non totalement compris.

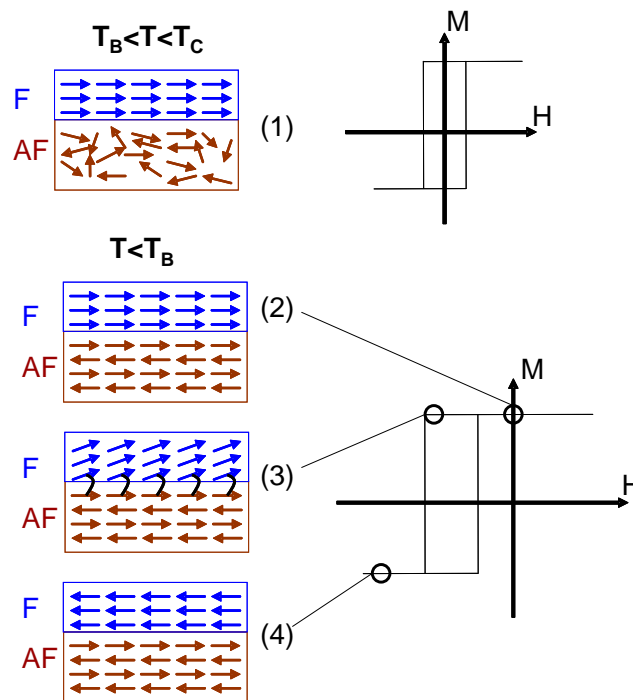


Figure 9 : Représentation schématique du couplage d'échange à différents états de la courbe d'hystérésis.

### 3.1) Dépendances en épaisseur

L'énergie étant ici interfaciale ( $J_{ex}$ ) – on parle de densité surfacique d'énergie d'échange, exprimée en  $J.m^{-2}$  - le champ d'échange en  $H_{ex}$  résultant va donc être dépendant de l'épaisseur du corps ferromagnétique ( $e_F$ ), comme illustré en figure 10. L'expression consacrée pour  $H_{ex}$  est :

$$H_{ex} = \frac{J_{ex}}{M_s e_F} \quad (\text{Eq. 51})$$



$J_{ex}$  dépend de la nature et des propriétés des corps AF considéré, de son épaisseur ( $e_{AF}$ ) et des conditions de fabrication.

On remarquera aussi, figure 5, que le champ coercitif  $H_c$  suit la même tendance que le champ d'échange en fonction de l'épaisseur, bien que ceci ne soit pas toujours vrai [25]. Le champ coercitif d'un système F/AF est généralement plus élevé que celui de la couche F. On parle de champ coercitif anormal ou « enhance coercivity field » en anglais.

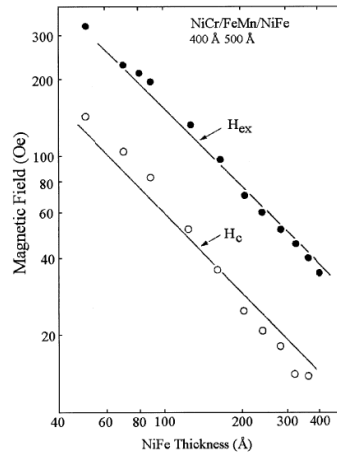


Figure 10 : Variation de  $H_{ex}$  et  $H_c$  avec l'épaisseur de la couche ferromagnétique pour le système bicouche FeMn/NiFe, d'après Mauri et al. [26]

De même, il existe une dépendance du champ d'échange  $H_{ex}$  avec l'épaisseur de l'antiferromagnétique  $e_{AF}$ , comme illustré figure 11. Cette dépendance est plus compliquée, et provient principalement du bon établissement de la phase AF au sein du matériau. D'une manière générale, il existe une épaisseur critique au-delà de laquelle  $H_{ex}$  atteint un plateau. A l'inverse,  $H_{ex}$  tend à s'annuler pour des très faibles valeurs de  $e_{AF}$ , et s'annule pour des valeurs suffisamment faibles, ce qui encore une fois dépend de la nature du corps AF. On peut ici aussi constater une variation de  $H_c$  avec  $e_{AF}$  avec une augmentation principalement localisée autour de l'épaisseur critique.

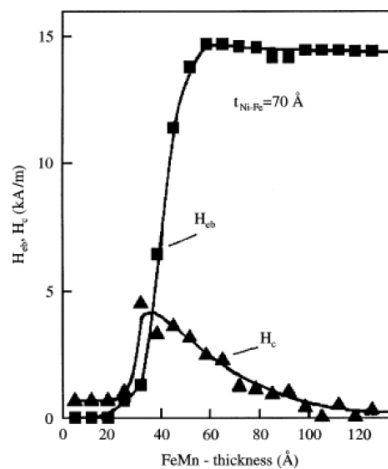


Figure 11 : Variations de  $H_{ex}$  et  $H_c$  avec l'épaisseur de la couche antiferromagnétique pour le système bicouche FeMn/NiFe, d'après Jungblunt et al. [27]

### 3.2) Modèles du couplage antiferromagnétique

Plusieurs modèles ont été proposés pour décrire le couplage d'échange à l'interface et ainsi estimer le champ d'échange  $H_{ex}$ . Le problème est simplifié en supposant que la couche AF possède une forte anisotropie magnétocristalline uniaxiale dans le plan de la couche et que sa structure magnétique globale reste insensible au champ magnétique appliqué. Ces modèles que nous allons résumer brièvement peuvent expliquer « grossièrement » les effets observés mais restent aujourd'hui insuffisants pour décrire toutes les facettes du couplage d'échange. De plus, ces modèles ne sont pas généraux et restent adaptés à certains systèmes F/AF.

#### a) *Modèle intuitif de Meiklejohn : interface idéale non compensée*

Dans leur papier original [20], Meiklejohn et Bean ont envisagé tous les cas de figure pouvant contribuer au couplage d'échange : rugosité d'interface, paroi d'AF... Cependant, face à la complexité de sa modélisation, ils ont décrit une première approche qui consiste à modéliser une interface F/AF non compensée, c'est-à-dire que tous les moments de la couche AF à l'interface pointent dans une même direction (figure 9). Une rotation cohérente des spins F est envisagée alors que les spins AF restent fixes. Il en résulte que le champ d'échange peut s'exprimer de manière phénoménologique comme :

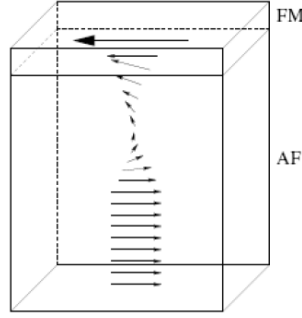
$$H_{ex} = \frac{J_{ex}}{M_s e_F} = \frac{2JS_F S_{AF}}{a^2 M_s e_F} \quad (\text{Eq. 52})$$

où  $J$  est l'intégral d'échange entre les spins interfaciaux  $S_F$  et  $S_{AF}$ , et  $a$  le paramètre de maille. Cependant, les valeurs expérimentales de la densité surfacique d'énergie interfaciales  $J_{ex}$  sont de deux ou trois ordres de grandeur inférieurs à celle de ce modèle. Des modèles plus réalistes doivent donc prendre en compte la rugosité d'interface, expliquer la présence de champ d'échange dans le cas d'une interface non compensée et prendre en compte la rotation d'aimantation au sein de la couche AF.

#### b) *Formation de parois dans l'AF : modèle de Néel/Mauri*

Néel [28] puis Mauri et al [26] ont proposé une solution alternative en autorisant une paroi de domaine à se développer parallèlement à l'interface dans la couche F ou dans l'épaisseur de la couche AF (figure 12). La couche F applique alors un couple sur les spins du dernier plan atomique de l'AF, les autres plans sont libres de s'orienter en fonction de leur anisotropie magnétocristalline  $K_{AF}$  et de leur couplage avec les plans voisins  $J_{AF}$ .

La présence d'une telle paroi induit une diminution de la variation d'énergie de surface lors du retournement de F provoquant ainsi une baisse apparente du champ d'échange. Dès lors, l'énergie d'interaction entre les deux matériaux n'est plus confinée à l'interface, mais répartie le long de la paroi du domaine. La couche AF étant supposée épaisse, la paroi peut s'étendre sans être limitée par une seconde interface. Seule la compétition entre l'anisotropie  $K_{AF}$  et l'interaction d'échange  $J_{AF}$  entre deux spins voisins va lui imposer une taille finie. On établit alors deux cas limites :



**Figure 12 : Représentation schématique d'une paroi de domaine créée dans la couche AF par le retournement de l'aimantation de la couche F, dans le modèle de Mauri.**

– faible couplage interfacial : le décalage du cycle est limité par le faible couplage interfacial  $J_{ex}$  qui se révèle insuffisant pour créer la paroi. Le champ d'échange  $H_{ex}$  s'écrit alors classiquement :

$$H_{ex} = \frac{J_{ex}}{M_s e_F} \quad (\text{Eq. 53})$$

– fort couplage interfacial : dans ce cas, le premier plan des spins interfaciaux est systématiquement entraîné par le retournement de l'aimantation de F, et le décalage du cycle est limité par l'énergie de la paroi ainsi créée. Le champ d'échange  $H_{ex}$  s'écrit alors :

$$H_{ex} = 2 \frac{\sqrt{A_{AF} K_{AF}}}{M_s e_F} \quad (\text{Eq. 54})$$

Dans ce cas, la barrière d'énergie à franchir pour retourner l'aimantation de la couche F est réduite d'un facteur  $J / 2\sqrt{A_{AF} K_{AF}}$ , ce qui donne des valeurs de champ d'échange du même ordre de grandeur que celles mesurées expérimentalement. Ce modèle permet d'obtenir une limite supérieure de la valeur du champ d'échange qui correspond à une rotation de  $180^\circ$  des moments de la couche AF à l'interface, par rapport à la direction de l'axe d'anisotropie.

Expérimentalement, la création d'une paroi à  $180^\circ$  a bien été observée dans le cas d'une couche de FeMn prise en sandwich entre une couche de NiFe et une couche de Co, vérifiant ainsi le modèle de Mauri. Dans les cas intermédiaires, les situations sont plus délicates à décrire car le couplage interfacial  $J_{ex}$  peut former une paroi avec un angle inférieur à  $\pi$ . Cependant, ce modèle suppose une couche AF infini. Or, il a été montré que dans certains systèmes avec des épaisseurs de couches AF plus petites que la taille d'une paroi, on observait un champ de décalage réduit. Dans ce cas, une telle paroi ne peut exister et d'autres mécanismes doivent alors être pris en compte.

### **c) Spins non compensés à l'interface : Modèle de Takano**

Takano et al [29, 30] suggèrent que seuls quelques moments non compensés sont responsables de l'aimantation rémanente en dessous de  $T_N$  et du champ de décalage. Pour l'expliquer, les auteurs ont supposé que l'interface est rugueuse. Les grains AF forment des

terrasses avec des moments magnétiques non compensés. A chaque changement de marche atomique, l'orientation des spins interfaciaux change de  $180^\circ$ . La rugosité entraîne l'apparition d'effets de taille finie : certains grains font apparaître un moment magnétique local non nul. De ce fait, une partie des spins interfaciaux devient non compensée. Ces spins vont alors contribuer au décalage du cycle d'hystérésis en créant un moment magnétique non nul à l'interface F/AF qui exerce un couple sur l'aimantation de la couche F adjacente. La simulation numérique effectuée par les auteurs par une répartition itérative des îlots indique qu'environ 1% des spins de l'interface sont non compensés. Les valeurs de champ d'échange  $H_{ex}$  obtenues sont cette fois en accord avec les résultats expérimentaux. La rugosité va également être exploitée par d'autres modèles.

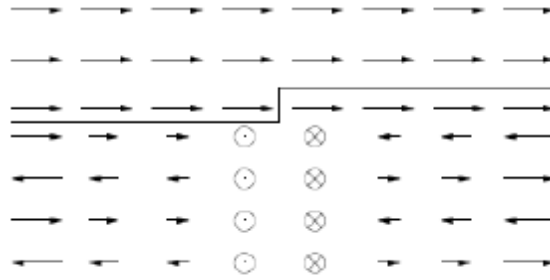
#### ***d) Spin-flop coupling***

Le modèle spin-flop a été introduit par Koon [31]. Dans son modèle, il propose, dans le cadre d'une interface complètement compensée, que le minimum d'énergie des spins AF soit à  $90^\circ$  des spins F dans le volume, afin de relaxer des frustrations magnétiques. De plus, il peut y avoir une légère dispersion des spins AF autour de leur axe d'anisotropie, ce qui a pour conséquence de créer un moment non nul à l'interface. Comme il est supposé que les spins AF sont rigides, cette composante non nulle donne naissance à l'anisotropie unidirectionnelle. Lors du retournement de l'aimantation, il peut aussi y avoir création de parois ; ce modèle se rapproche de celui de Mauri, cité précédemment, seule la nature du couplage interfacial changeant.

En pratique, cette configuration perpendiculaire a bien été observée par diffraction de neutrons, mais le modèle est contesté par les travaux de Schultess et Butler [32]. S'ils confirment eux aussi la possibilité d'une configuration spin-flop, ils infirment la possibilité d'avoir un AF compensé rigide en tenant compte de paramètres réalistes, et donc la présence d'un champ d'échange. Selon eux, les spins de sous réseaux sont entraînés de manière symétrique durant le retournement de F. La conséquence est alors la création d'une anisotropie uniaxiale supplémentaire et une augmentation de la coercivité, ce qui sera une hypothèse à retenir lorsque nous aborderons l'anisotropie rotatoire. Par contre, ils mettent en avant le fait que les défauts d'interface pourraient eux être à l'origine du couplage d'échange.

#### ***e) Rugosité interfaciale : Modèle de Malozemoff***

Le modèle de Malozemoff [33] fait appel à la rugosité d'interface. Si l'on envisage une simple marche atomique le long de l'interface alors une partie de la couche AF sera frustrée, du fait de l'alignement des spins F adjacents entraînant l'apparition d'une paroi de domaine perpendiculairement à l'interface (voir figure 13). Dans son modèle, Malozemoff suppose que l'interface est parfaitement compensée, c'est à dire d'aimantation globale nulle en l'absence de rugosité. Selon Malozemoff, lorsqu'une couche F monodomaine est mise en contact avec une couche AF, celle-ci va se diviser en domaines de façon à minimiser son énergie. La taille de ces domaines est fixée par la compétition entre l'énergie d'interface et l'énergie de la paroi. La situation s'équilibre lorsque la taille des domaines devient égale à la longueur de paroi et le décalage de cycle d'une forme très proche de l'équation obtenue par Mauri dans la limite de forts couplages interfaciaux.



**Figure 13 : Modèle de Malozemoff. Représentation schématique dans le cas d'une interface non compensée de la paroi de domaine créée dans la couche AF par une marche monoatomique à l'interface.**

Puis, Malozemoff a étendu son modèle en incluant dans ses calculs l'influence de la taille du domaine magnétique par rapport à celle d'une paroi [34]. Dans le cas où la taille du domaine est très grande devant par rapport à celle de la paroi, les moments de la couche AF sont colinéaires à la direction de l'axe d'anisotropie et l'épaisseur de la paroi peut être considérée comme nulle au regard de la taille du domaine. Les moments de la couche AF sont tous alignés le long de l'axe d'échange et une énergie est attribuée à la paroi. Par contre, lorsque la taille du domaine est plus petite que celle de la paroi, les moments de la couche AF ne sont plus alignés le long de cet axe. L'angle entre deux moments consécutifs sera d'autant plus grand que la paroi est très compressée. Dans ce cas, l'énergie d'échange domine l'énergie d'anisotropie. Ainsi, la minimisation de l'énergie du système dans le modèle de Malozemoff fait apparaître pour l'AF deux épaisseurs critiques  $e_{cr1}$  et  $e_{cr2}$  pour AF.

Pour une épaisseur supérieure à  $e_{cr1}$ , une configuration AF presque totalement ordonnée est favorisée. Dans le cas contraire, le système passe par un état de transition dans lequel la taille d'un domaine magnétique est quasiment identique à l'extension d'une paroi. En dessous de l'épaisseur  $e_{cr2}$ , la taille des domaines magnétiques est inférieure à la taille d'une paroi, la valeur du champ d'échange en est affecté.

Il s'agit du premier modèle qui prédit une variation théorique du champ d'échange en fonction de l'épaisseur de la couche AF. Dans de nombreux systèmes expérimentaux, la dépendance de  $H_{ex}$  avec  $e_{AF}$  suit la variation obtenue par Malozemoff [35, 36]. Ce modèle prédit la disparition du champ d'échange au-dessus de l'épaisseur critique  $e_{cr1}$ . Néanmoins, cette limite n'a jamais été observée expérimentalement. En fait, la couche AF n'est jamais parfaitement ordonnée et des domaines magnétiques sont toujours présents. L'existence de l'épaisseur minimale est plus facile à comprendre. Ainsi, la limite  $J = K_{AF}e_{AF}$  détermine l'épaisseur de la couche AF nécessaire pour bloquer les parois de domaines lorsque l'aimantation de la couche F est renversée. Le modèle de Malozemoff prédit une transition abrupte mais, en réalité, on observe une décroissance continue du champ d'échange en dessous de cette épaisseur critique ( $e_{cr2}$ ).

### ***f) Impuretés magnétiques***

La présence d'atomes non magnétiques favorise la formation de domaines dans le volume de la couche AF car, lorsqu'une paroi peut passer par un défaut, elle réduit considérablement son énergie. Ainsi, contrairement au modèle de Malozemoff, la présence de domaines induit une certaine configuration des moments de la couche AF à l'interface qui régit donc

l'interaction F/AF. Lorsque le système est refroidi à partir d'une température supérieure à  $T_N$  sous champ magnétique, les domaines de l'AF vont se geler et donc porter une aimantation moyenne non nulle. C'est sur ce principe qu'est basé le domaine state model [37] développé par Nowak et al. à partir de simulations Monte Carlo. L'effet de la température est également intégré dans ces simulations.

Ces simulations ont pu permettre de mettre en évidence des propriétés physiques liées au champ d'échange comme sa variation en fonction de l'épaisseur, des effets de relaxation de l'aimantation nette de la couche d'AF au cours de multiples cyclages (effet de traînage), de l'influence du champ appliqué pendant le recuit ou encore de l'influence de la température. Une des limites de ce modèle est la nécessité d'utiliser une dilution de l'AF par des impuretés de l'ordre de 40 % à 50 % afin d'obtenir de grandes valeurs de champ d'échange. On peut se demander si une telle dilution a bien une réalité physique. De plus, dans les expériences réalisées sur Co/CoO, même sans dilution, un champ d'échange reste observé.

### ***g) AF polycristallins***

Dans la pratique, la plus part des systèmes F/AF sont polycristallins. On peut alors facilement imaginer les contributions diverses qui peuvent influencer le couplage d'échange tant les sources de frustration magnétique et de couplage sont nombreuses : défauts, rugosité d'interface, joints et taille de grains, distributions des anisotropies magnétiques locales, de  $T_B$ ... Les modèles théoriques cités expliquent certaines contributions. Ceci aboutit à de nombreux résultats expérimentaux, qui parfois, pour des systèmes supposés identiques, se contredisent. En effet, la texture de croissance, la taille des grains, la mise en ordre à travers des traitements thermiques peuvent contribuer positivement ou négativement au couplage d'échange.

Ainsi, l'apparition du décalage du cycle d'un système AF/F nécessite parfois une mise en ordre magnétique de la couche AF. En effet, la répartition brute de dépôt des spins AF non compensés dans l'alliage polycristallin peut être aléatoire et ainsi induire un couplage d'échange macroscopique nul. L'état rémanent AF est donc très probablement composé de domaines magnétiques. Des traitements thermiques sont en général utilisés pour créer le champ de décalage et donc l'anisotropie unidirectionnelle. Au delà de  $T_B$ , la minimisation de l'énergie ne s'accommode plus des frustrations interfaciales. Les spins F soumis au champ de recuit sont alignés et induisent une direction privilégiée pour les spins AF interfaciaux. Lors du refroidissement, l'interaction d'échange reprend le dessus sur l'agitation thermique, mais l'énergie de frustration est minimisée en tenant compte de la direction privilégiée imposée aux spins F.

### **3.3) Propriétés dynamiques du couplage d'échange**

Nous allons ici nous intéresser au comportement dynamique de systèmes couplés antiferromagnétiquement. En statique, on définit le champ d'échange comme le centre de l'intersection des branches ascendantes et descendantes du cycle d'hystérésis  $M(H)$ . Mais cela suppose que les champs coercitifs effectifs ascendants et descendants sont identiques. Or, on a vu précédemment que la couche AF pouvait être le siège de parois, certains spins de

l'interface étant retournés, ce qui peut modifier le champ coercitif effectif. Il a par exemple été observé des effets de traînage magnétique [38] ou bien des renversements progressifs de l'aimantation au cours du temps dus à des fluctuations thermiques de grains AF [39] ; la définition du champ d'échange peut donc être remise en question. En revanche, plutôt que renverser l'aimantation et ainsi induire des phénomènes hystérétiques, c'est-à-dire irréversibles, les méthodes dynamiques viennent faiblement déséquilibrer l'aimantation de sa position d'équilibre. Ces perturbations permettent de caractériser l'énergie magnétique du système, comme décrit partie II.1 ; il est alors possible de sonder « localement » le système.

La mesure de résonance ferromagnétique, ou « FMR », est alors un outil puissant, très complémentaire des mesures statiques, et va permettre d'analyser finement les processus du couplage F/AF. On va pouvoir potentiellement répondre aux modèles mettant en œuvre des spins AF restant gelés, ou au contraire ceux supposant la possibilité d'arracher ces spins lors du retournement de l'aimantation.

De plus, l'essor des films minces polycristallins, notamment dans les années 80, va permettre l'utilisation de systèmes plus variés ainsi que l'utilisation d'épaisseurs nanométriques bien contrôlées et d'interfaces de qualité. De nombreuses études ont ainsi analysé le comportement dynamique de systèmes polycristallins F/AF, tout d'abord à l'aide de techniques FMR classiques (cavité résonante balayée en champ) à partir des années 80-90, puis plus récemment avec des mesures fréquentielles, dites VNA-FMR [39, 40, 42].

### a) Couplage d'échange statique vs. dynamique

La figure 14, extraite de [40], met en avant que le champ d'échange mesuré en dynamique  $H_{ex,dyn}$  à le même type de dépendance avec  $e_F$  que le champ d'échange mesuré en statique  $H_{ex,stat}$ , mais les valeurs respectives diffèrent généralement.

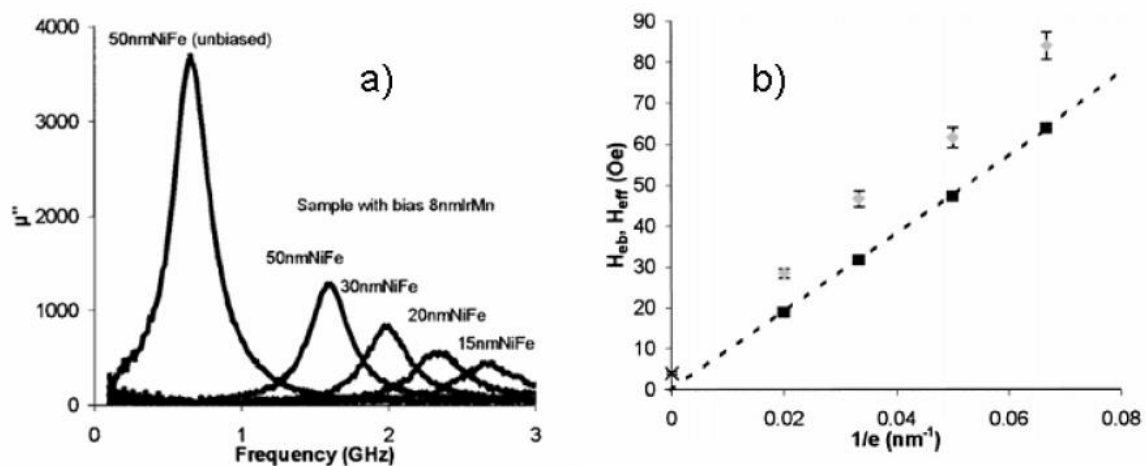


Figure 14 : a) Partie imaginaire de la perméabilité  $\mu''$  en fonction de la fréquence pour des échantillons NiFe/IrMn avec différentes épaisseurs de NiFe. b) Evolutions correspondantes du champ d'échange  $H_{cb}$  (statique) et du champ effectif  $H_{eff}$  (dynamique) en fonction de  $1/e_{NiFe}$ . Mesures réalisées en perméamétrie monopaire, d'après Acher et al. [40].

A présent, il est intéressant de regarder l'expression théorique de  $f_{FMR}$  (ou fréquence de FMR) en fonction du champ magnétique appliqué. Si l'on ajoute la contribution du champ

d'échange à la perméabilité, et que l'on suppose  $H_{ex,dyn}$  suivant l'axe facile ( $\varphi_{ex} = 0$ ), alors on obtient une fréquence de résonance :

$$f_{FMR} = \frac{\gamma_0}{2\pi} \sqrt{(H_k + H_{dc} + H_{ex} + M_s)(H_k + H_{dc} + H_{ex})} = \frac{\gamma_0}{2\pi} \sqrt{(H_{eff} + M_s)H_{eff}} \quad (\text{Eq. 54})$$

Cette expression est utile pour interpréter la figure 15.a qui montre le cycle d'hystérésis de la fréquence de résonance au carré ( $f_{FMR}^2$ ) en fonction du champ extérieur appliqué  $H_{dc}$  ( $H_{ext}$  sur la figure) suivant l'axe facile. Il s'agit ici du système bicouche NiFe/IrMn. On constate alors que les valeurs de  $H_{ex,dyn}$  sont légèrement inférieures à celles du champ d'échange défini en statique  $H_{ex,stat}$ . Ceci a été rapporté pour différents AF et également par différentes techniques de mesure. On remarque de plus une dissymétrie dans la courbe  $f_{FMR}^2$  vs.  $H_{dc}$  entre les deux branches du cycle d'hystérésis, ce qui montre que le retournement de l'aimantation est asymétrique. Ceci peut être corrélé avec des changements magnétiques au sein de la couche AF (domaines, parois) ainsi que la nucléation de domaines dans F [41, 42, 43]. L'origine de la coercivité ne peut donc pas être négligée pour expliquer la différence entre  $H_{ex,dyn}$  et  $H_{ex,stat}$ .

Enfin, il a été aussi décrit qu'en sus d'être inférieur aux valeurs statiques, le champ d'échange dynamique peut apparaître à de plus faibles épaisseurs  $e_{AF}$  qu'en statique (figure 15.b). L'influence du couplage d'échange en dynamique se manifeste donc aussi en faisant apparaître une deuxième épaisseur critique  $e_{cr,dyn}$ , différente de celle en statique  $e_{cr,stat}$ . Ceci confirme bien les comportements différents du couplage lors de processus de renversement de l'aimantation et de la déviation de l'aimantation par rapport à sa position d'équilibre. Cette nouvelle épaisseur critique peut trouver une explication dans la taille des grains et la l'anisotropie de la couche AF, élément que nous aborderons plus loin.

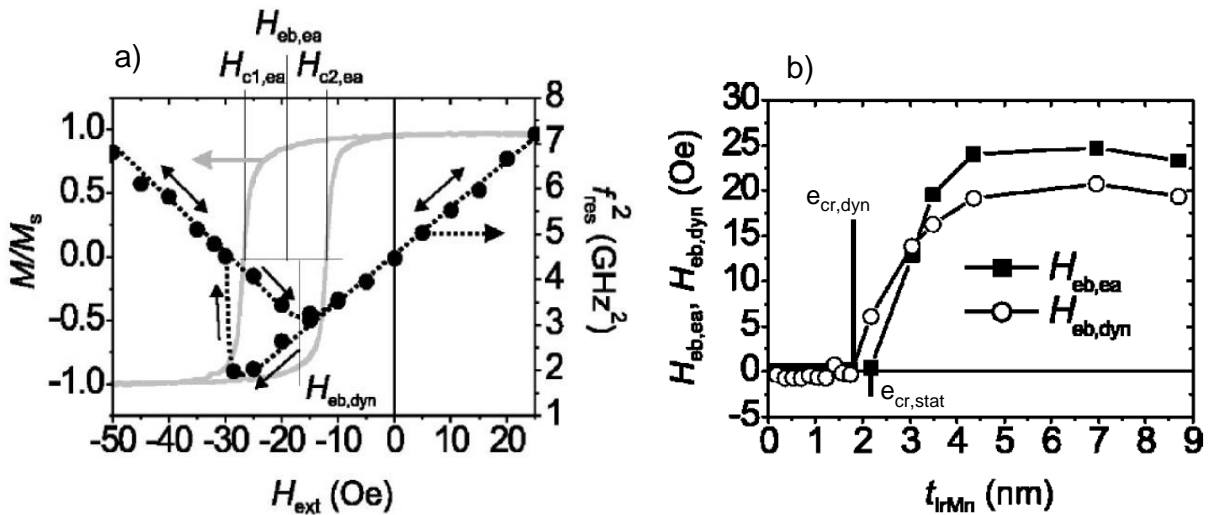


Figure 15 : Cycle d'hystérésis et dépendance de  $f_{FMR}^2$  en fonction du champ magnétique pour une bicouche NiFe/IrMn. Les positions respectives du champ d'échange statique  $H_{eb,ea}$  et dynamique  $H_{eb,dyn}$  sont indiquées, b) Comparaison des champs d'échange statiques et dynamiques en fonction de l'épaisseur de AF. D'après Mc Cord et al. [39]



## b) Anisotropie rotatoire

Nous venons de voir que l'on pouvait définir le champ d'échange dynamique différemment qu'en statique. Cependant, lorsque l'on injecte  $H_{ex,dyn}$  dans l'équation dynamique, on constate que la fréquence de résonance théorique reste souvent inférieure à celle mesurée dynamiquement : il peut donc exister donc une anisotropie supplémentaire, qui n'est pas d'ordre unidirectionnel mais due exclusivement à l'alliage AF. Une explication phénoménologique peut être donnée à travers un terme d'anisotropie rotatoire,  $H_{k,rot}$  [39, 45]. Elle est isotrope et augmente donc l'anisotropie de l'aimantation quelque soit sa direction. Cette anisotropie est suggérée dans plusieurs théories (Schultess, Koon, Takano en particulier) mais par la suite nous la considérerons comme un paramètre phénoménologique, son origine étant trop complexe à intégrer dans des modèles et trop dépendante de paramètres expérimentaux. Elle est simplement mise en évidence en dynamique mais n'a que rarement été observée en statique, pour des conditions particulières de mesure en champ faible et en température [46].

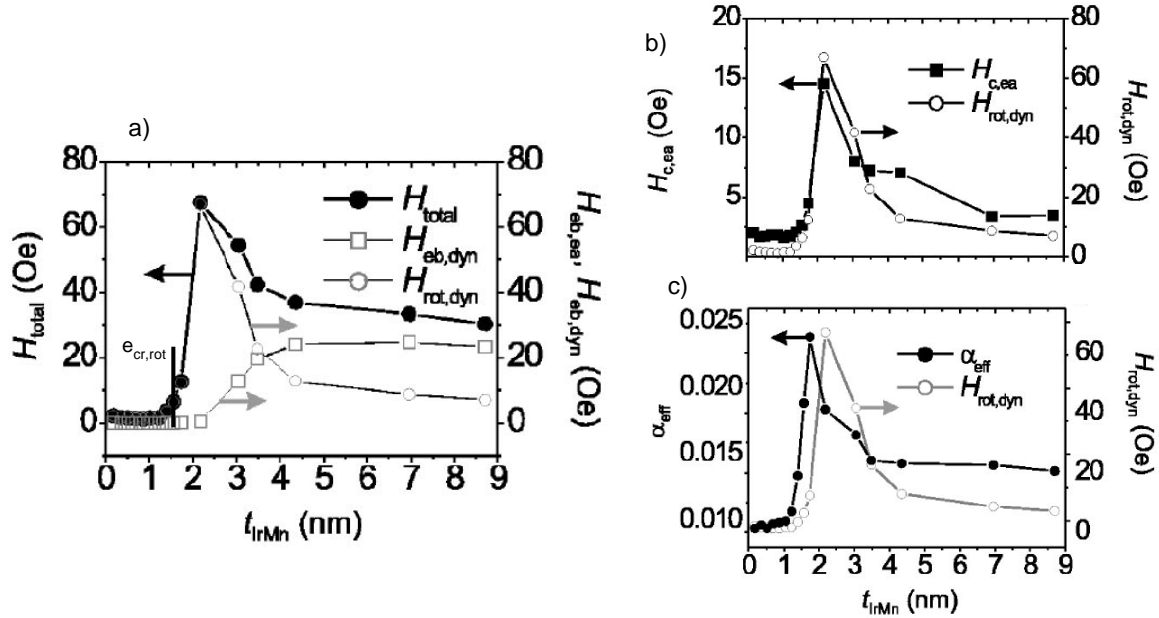


Figure 16 : Comparaison du champ d'anisotropie rotatoire en fonction de l'épaisseur d'AF à : a) Champ d'anisotropie total et champ d'échange dynamique, b) Champ coercitif, c) l'amortissement effectif. D'après Mc Cord et al. [39]

On peut définir une densité d'énergie rotatoire associée à cette anisotropie, en supposant qu'elle fait un angle  $\varphi_{rot}$  avec l'axe facile dans la direction  $\mathbf{u}_{k,rot}$ , de la forme :

$$G_{k,rot} = \frac{1}{2} \mu_0 H_{k,rot} \left( 1 - \left( \frac{\vec{u}_{k,rot} \cdot \vec{M}}{M_s} \right)^2 \right) = \frac{1}{2} \mu_0 M_s H_{k,rot} (1 - \cos^2(\phi - \phi_{rot}) \sin^2 \theta) \quad (\text{Eq. 55})$$

Puisque elle est de nature isotrope, on aura en pratique  $\varphi_{rot} = \phi$ . On réécrit donc le champ effectif intervenant dans l'équation de Kittel comme :

$$H_{eff} = (H_{k,int} + H_{dc} + H_{ex,dyn} + H_{k,rot}) \quad (\text{Eq. 56})$$

Comme on le montre dans la figure 16.a, une troisième notion d'épaisseur critique peut être définie :  $e_{cr,rot}$ . Elle apparaît avant le couplage d'échange dynamique et diminue fortement lorsque ce dernier est bien établi. De plus, il semble que l'augmentation du champ coercitif aux alentours de cette épaisseur critique, montrée précédemment, coïncide également avec l'apparition de  $H_{k,rot}$  (figure 16.b), tout comme une augmentation de l'amortissement effectif (figure 16.c).

### c) Augmentation de l'amortissement

Il a été observé d'une manière générale que le couplage d'échange augmentait significativement l'amortissement de la couche F, en comparaison à la couche F non couplée, et ceci même au dessus de la température de blocage, comme montré figure 17.a. On y observe la comparaison de la largeur de raie à mi-hauteur pour un système NiO/NiFe comparé à une couche de NiFe seule. La température de blocage du NiO est aux alentours de 200°C, et l'amortissement du système couplé reste supérieur au système non couplé.

Une des raisons provoquant cet élargissement a été cité précédemment : dans le cas d'une couche AF n'ayant pas une structure stable, l'anisotropie rotatoire semble augmenter significativement l'amortissement (figure 16.c), et cette énergie semble toujours présente. Elle représente en quelque sorte les fluctuations d'anisotropie et la dispersion de taille de grain de l'alliage AF, ce qui semble inévitable, surtout dans les couches polycristallines. On comprend ici le phénomène « visqueux » que la couche AF exerce sur la couche F, augmentant ainsi l'amortissement effectif.

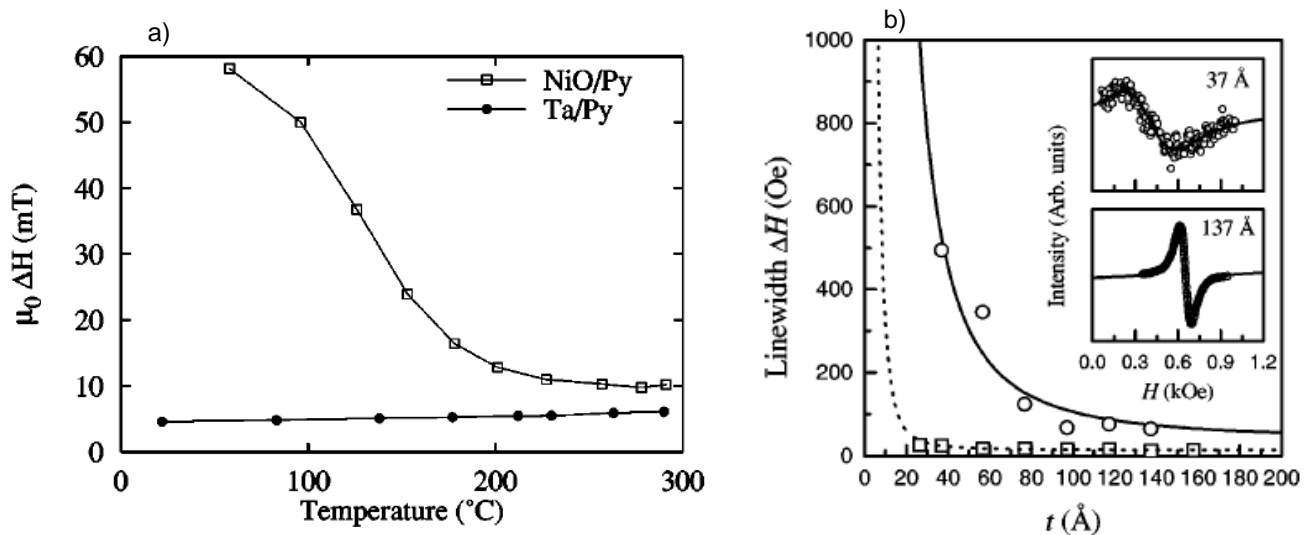


Figure 17 : a) Evolution de la largeur de raie à mi-hauteur en fonction de la température pour un système couplé et non couplé AF, d'après Mc Micheal et. al [43] b) Dépendance de la largeur de raie à mi-hauteur en fonction de l'épaisseur de F (les carrés représente du NiFe, les cercles du NiFe/NiO), d'après Rezende et. al [48].

Une seconde raison, évoquée plus haut, sont les processus à deux magnons. Dans le cas d'une couche ferromagnétique seule, les rugosités d'interface se comportent comme des

centres diffuseurs vis-à-vis des magnons. Cela lève la dégénérescence du mode uniforme, d'autres modes sont excités, ce qui contribue à augmenter l'amortissement effectif. Cette théorie, développée par Arias et Mills pour des couches ferromagnétiques douces [47] a été étendue aux systèmes F/AF par Rezende et. al [48]. Elle est illustrée figure 17.b où l'on observe bien une dépendance en  $e_F^{-2}$  de la largeur de raie, comme prévu par la diffusion à deux magnons. On constate de plus que cette dépendance est bien plus importante que dans le cas où la couche F n'est pas couplée.

#### ***d) Modèle imagé des grains AF et de leur influence sur le couplage d'échange***

Il est évidemment difficile, voir impossible, de relier tous les paramètres que nous venons de passer en revue par un modèle analytique : l'établissement du couplage d'échange, le champ coercitif, l'amortissement effectif, l'anisotropie rotatoire. On peut toutefois donner une image qualitative de ces phénomènes, à travers la figure 18, qui résume l'influence de l'évolution des grains antiferromagnétiques en fonction de l'épaisseur AF sur les propriétés de l'aimantation.

- $e_{AF} < e_{cr,rot}$  : les épaisseurs mises en jeu sont très faibles et les grains AF sont généralement très petits, donc instables thermiquement. La couche AF est globalement superparamagnétique et ne perturbe donc pas la couche F.
- $e_{cr,rot} < e_{AF} < e_{cr,dyn}$  : la taille de certains grains AF est suffisante pour qu'ils deviennent antiferromagnétiques. L'énergie magnétocristalline de l'alliage AF n'est pas suffisante pour permettre l'apparition de spins non-compensés à l'interface AF/F. Les spins vont alors préférer une configuration « spin-flip » à  $90^\circ$  de la direction d'aimantation de F, renforçant ainsi son anisotropie. Il n'y a donc pas d'effet de couplage d'échange (pas de décalage du cycle) et les spins AF sont retournés en même temps que ceux de la couche F lors de l'application d'un champ statique. Cependant, ils vont "freiner" ce retournement par des processus irréversibles (déplacement de parois, défauts...) dans la couche AF et absorber ou diffuser localement des ondes spins lors d'une excitation RF. Ceci explique l'apparition du champ d'anisotropie rotatoire, l'augmentation du champ coercitif ainsi que celle de l'amortissement.
- $e_{cr,dyn} < e_{AF} < e_{cr,sat}$  : la taille de certains grains AF atteint une valeur critique pour laquelle des spins non compensés à l'interface AF/F peuvent exister grâce à une anisotropie magnétocristalline AF maintenant suffisamment forte. Ainsi, à partir de  $e_{cr,rot}$ , il existe un champ d'échange. Ceci a pour conséquence de rigidifier les spins AF dans la direction du piégeage. Ainsi, les spins AF sont moins susceptibles de tourner et de suivre le renversement de l'aimantation de la couche F. Il y a alors coexistence de deux phases : une partie des grains AF participe au piégeage et à la création du champ d'échange  $H_{ex}$  et une autre partie contribue toujours à l'anisotropie rotatoire induite. La faible différence entre  $e_{cr,dyn}$  et  $e_{cr,sat}$  vient du fait que les mesures statique et dynamique sont de nature différente : la première implique un renversement total de la couche tandis que la deuxième met en jeu une faible excitation RF avec des champs magnétiques inférieurs à 1 Oe, par exemple. Dans le premier cas, on mesure une différence de champs coercitifs liée à des phénomènes irréversibles et dans l'autre, on

sonde l'anisotropie locale de la couche F. On comprend alors que les mesures dynamiques soient plus sensibles à l'apparition du couplage d'échange dont les premiers états sont d'habitude "masqués" par les mesures statiques.

-  $e_{cr,sat} < e_{AF}$  : l'épaisseur de la couche AF est ici suffisante pour permettre d'avoir une répartition homogène de grains AF à travers toute l'épaisseur. Ceci permet aux spins non-compensés de se stabiliser. Par ailleurs, la quasi-totalité des grains AF se couplent entre eux et participent ainsi au piégeage de la couche F. Cependant, il peut toujours exister un petit nombre de grains AF participant au « spin-flop » et expliquant un champ coercitif  $H_c$  généralement plus élevé que pour la couche F non couplée, et la présence d'une anisotropie induite rotatoire modérée.

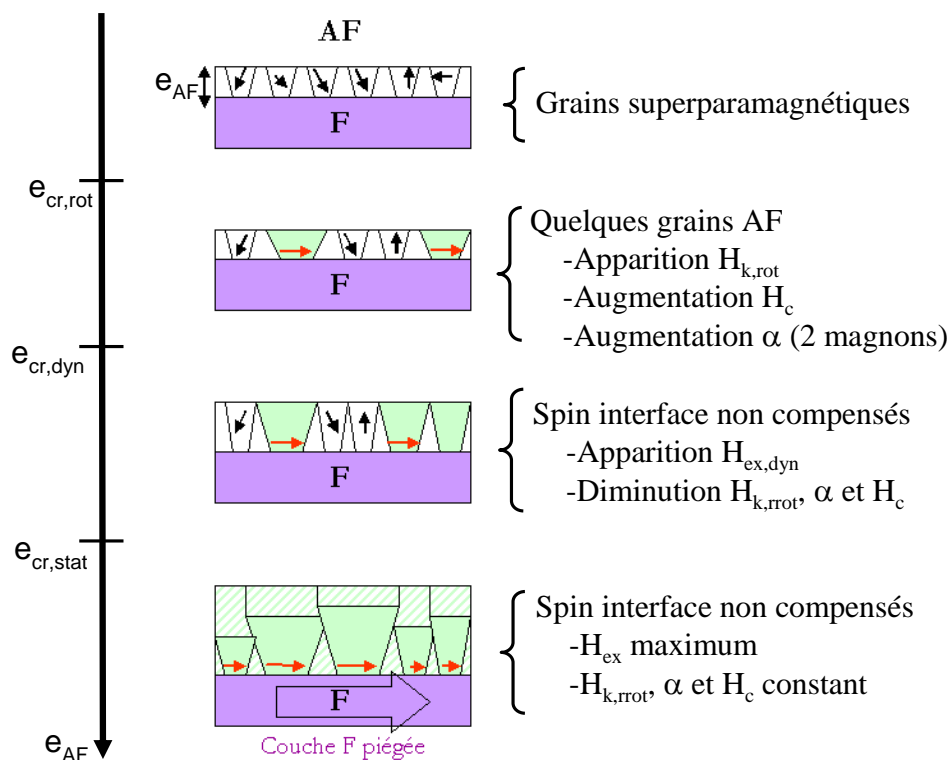


Figure 17 : représentation schématique de l'influence de la taille des grains de l'AF sur les propriétés du couplage d'échange [22].

# Ferroélectricité

## IV) Généralités sur la ferroélectricité en couches minces

### 4.1) Définition et caractéristiques d'un diélectrique

Un matériau est considéré comme diélectrique s'il ne contient pas de charges électriques susceptibles de se déplacer de façon macroscopique, autrement dit c'est un milieu qui ne peut pas conduire macroscopiquement le courant électrique. Malgré l'impossibilité des milieux diélectriques de conduire le courant, ils présentent de nombreuses caractéristiques électriques. En effet les atomes qui constituent le matériau peuvent présenter des dipôles électrostatiques qui sont susceptibles d'interagir avec un champ électrique. Cette interaction se traduit par la création d'une polarisation  $\vec{P}$  reliée à ce champ électrique  $\vec{E}$ , par la susceptibilité électrique  $\chi$ .

La polarisation  $\vec{P}$  est, par définition, le moment dipolaire par unité de volume :

$$\vec{P} = \frac{1}{V} \sum_n q_n \vec{r}_n \quad (\text{Eq. 57})$$

où  $V$  est le volume de la maille cristalline et  $\vec{r}_n$  est le vecteur position de la  $n$ ème charge  $q_n$  dans la maille cristalline. Du point de vue macroscopique, la polarisation est reliée au champ extérieur appliqué et au déplacement électrique  $\vec{D}$  par les relations suivantes :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E} \quad (\text{Eq. 58})$$

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \varepsilon_0 (1 + \chi) \vec{E} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} \quad (\text{Eq. 59})$$

On peut ainsi définir la permittivité relative  $\varepsilon_r$  d'un matériau diélectrique qui représente la capacité du matériau à stocker les charges électriques. Cette constante diélectrique est tensorielle et complexe (comme la perméabilité) dont la partie réelle représente la capacité de polarisation du matériau et la partie imaginaire correspond à la dissipation de l'énergie par le matériau.

A l'échelle microscopique, la polarisation d'un cristal peut être définie en fonction du champ électrique  $\vec{E}_{loc}$  qui correspond à la somme du champ électrique externe et des champs générés par les dipôles internes au matériau, relié à la polarisation par la relation de Lorentz :

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E} + \frac{1}{3} \vec{P} \quad (\text{Eq. 60})$$

$$\vec{P} = N \alpha_t \vec{E}_{loc} = N (\alpha_e + \alpha_i + \alpha_d) \vec{E}_{loc} \quad (\text{Eq. 61})$$

où  $N$  est le nombre de dipôles élémentaires par unité de volume et  $\alpha_t$  la polarisabilité totale (grandeur microscopique). Comme pour le magnétisme, on peut noter que le champ local  $\vec{E}_{loc}$

contient également un champ dépolarisant dû à la densité de charges surfaciques qui va s'opposer au champ externe, et dépendre de la forme de l'échantillon.

On peut enfin relier la constante diélectrique à la polarisabilité par la relation de Clausius-Mossoti-Lorentz, qui tient compte de l'interaction entre dipôle et relie propriétés macroscopiques et microscopiques :

$$\frac{\varepsilon_r - 1}{\varepsilon_r + 2} = \frac{1}{3} N \alpha_t \quad (\text{Eq. 62})$$

Différents mécanismes sont à l'origine de la polarisation, dont les principaux sont représentés figure 18 :

la polarisabilité électronique  $\alpha_e$  est due à un déplacement du barycentre du nuage d'électrons par rapport au noyau atomique dans la direction opposée du champ. On parle alors d'un atome polarisé électroniquement. Cette polarisation induit un champ électrique au sein de l'atome qui tend à compenser l'effet du champ extérieur. L'effet de la polarisation électronique sera d'autant plus important pour des atomes dont le nombre d'électronique  $Z$  est élevé. Les temps de relaxation de la polarisabilité électronique sont de l'ordre de :  $10^{-14}$  à  $10^{-16}$  s.

- la polarisabilité ionique  $\alpha_i$  est issue du déplacement des atomes les uns par rapport aux autres dans les molécules ioniques sous l'action d'un champ électrique. Cette polarisation sera dominante aussi dans le cas des oxydes de permittivité relative supérieure à 10. Les temps de relaxation de la polarisabilité ionique sont de l'ordre de :  $10^{-10}$  à  $10^{-13}$  s.

La dépendance fréquentielle des polarisabilités électronique et ionique a une forme de Lorentz avec un terme de viscosité, comme pour la perméabilité.

- la polarisabilité dipolaire  $\alpha_d$  concernant les dipôles qui présentent un moment permanent et qui peuvent changer d'orientation sous un champ électrique. Les temps de relaxation de la polarisabilité dipolaire sont de l'ordre de :  $10^{-9}$  à  $10^{-3}$  s.

- la polarisation interfaciale : elle est due aux impuretés et aux défauts du réseau cristallin qui introduisent des discontinuités de la polarisation où peuvent se déplacer les porteurs libres. Les temps de relaxation de la polarisabilité dipolaire sont de l'ordre de :  $10^{-5}$  à  $10^3$  s.

La dépendance fréquentielle des polarisabilités dipolaire et interfaciale a en première approche une forme de fonction de Debye :

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i2\pi\tau_0 f} \quad (\text{Eq. 63})$$

avec  $\varepsilon_s$  la permittivité basse fréquence (bien avant la résonance),  $\varepsilon_\infty$  la permittivité haute fréquence (loin de la résonance) et  $\tau_0$  le temps de relaxation. Toutefois, ce modèle fut développé dans le cadre de dipôles n'interagissant pas entre eux, donc principalement les gaz. Dans les solides, cette interaction doit être prise en compte. Malheureusement, il n'existe pas de modèle bien défini dans ce cas là. Par contre, des modèles empiriques existent [49, 50, 51] et une des descriptions couramment utilisée de la permittivité basse fréquence est :

$$\varepsilon = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{\left(1 + (i2\pi\tau_0 f)^{\alpha}\right)^{\beta}}, \quad 0 < \alpha, \beta < 1 \quad (\text{Eq. 64})$$

avec  $\alpha$  et  $\beta$  des paramètres qui tiennent compte de la dispersion du temps de relaxation. Si  $\beta = 1$ , on parle de formule de Cole-Cole [51], et c'est cette formule qui nous permettra d'ajuster les résultats mesures basse fréquence que nous présenteront ultérieurement (cf. II.5.3).

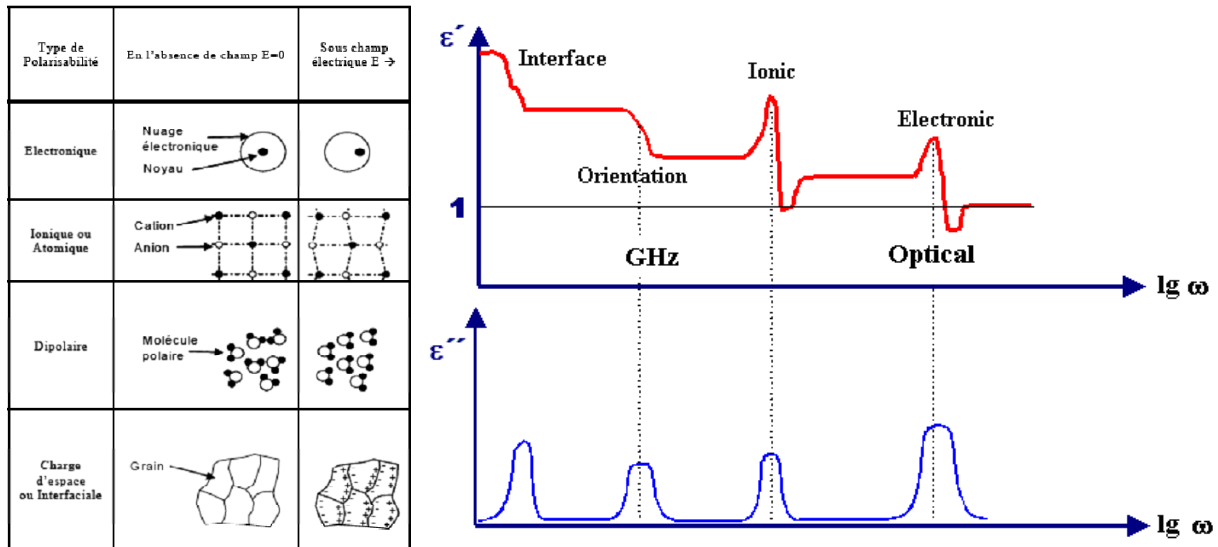


Figure 18 : Représentation schématique des différents mécanismes de polarisation et évolution de la polarisation totale en fonction de la fréquence.

## 4.2) Ferroélectricité

Si le caractère ferromagnétique dépend principalement des électrons de conduction (bandes s et d), le caractère ferroélectrique dépend lui principalement de la structure cristalline et des symétries de son réseau, comme le montre la figure 19. En effet, pour qu'un cristal possède un moment dipolaire - c'est-à-dire qu'en l'absence de champ électrique le centre de gravité des charges positives ne coïncide pas avec celui des charges négatives – le cristal ne doit pas posséder de centre de symétrie.

Si l'on se reporte aux classes de symétrie des cristaux, au nombre de 32 (figure 19), 11 sont centrosymétriques, et donc ne peuvent avoir de moment dipolaire. Des 21 restantes, certaines possèdent un ou plusieurs axes polaires et des propriétés vectorielles. On va pouvoir ainsi définir plusieurs propriétés diélectriques :

- Piézoélectricité : 20 des 21 classes dipolaires le sont. Sous l'application d'un champ électrique, il va y avoir une déformation du cristal. Réciproquement, sous contrainte, il va y avoir création d'une polarisation spontanée (analogue à la magnétostriction).

- Pyroélectricité : des 20 classes piézoélectriques, 10 sont pyroélectriques, c'est-à-dire qu'une variation de température va entraîner l'apparition de charges sur les faces perpendiculaires à l'axe polaire.

- Ferroélectricité : enfin, des 10 classes pyroélectriques, certaines possèdent une polarisation instantanée qui peut être renversée par l'application d'un champ électrique, ce sont les ferroélectriques (analogie au ferromagnétisme et la notion de coercivité).

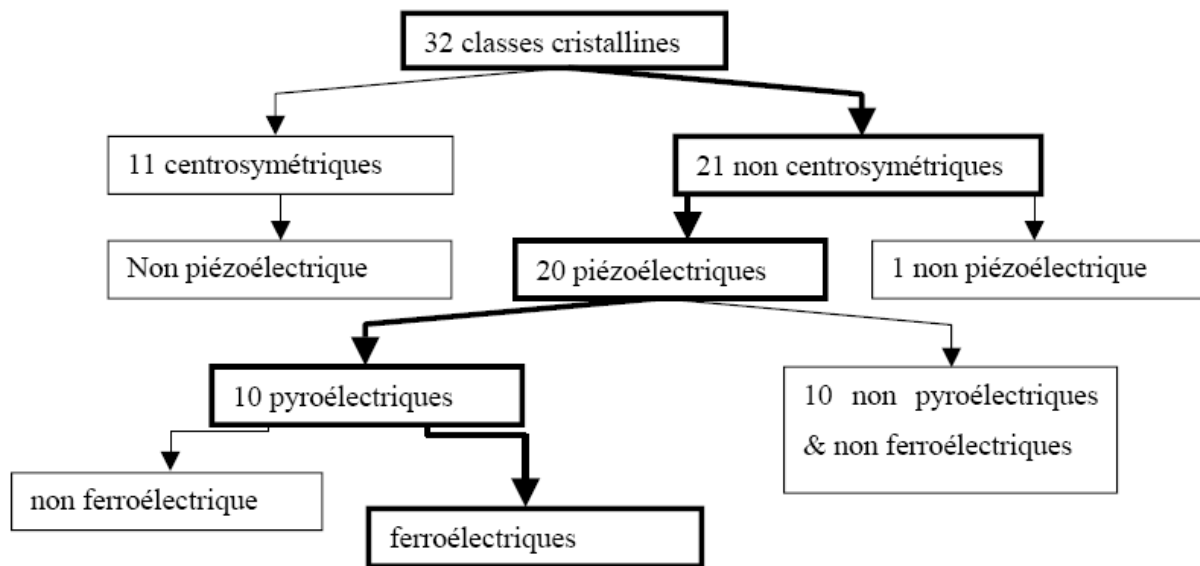


Figure 19 : Hiérarchisation des classes cristallines

Le terme ferroélectrique est bien sur dû à l'analogie. Par contre, bien qu'on puisse faire certaines analogies, on va également s'apercevoir que l'origine peut elle être très différente. Par exemple, on a vu précédemment que le caractère ferroélectrique a principalement pour origine la structure cristalline.

Les matériaux ferroélectriques, possèdent une polarisation rémanente  $P_r$ , et le comportement vis-à-vis d'un champ électrique est hystérétique, caractérisé par un champ coercitif  $E_c$ , comme montré figure 20. Ce comportement hystérétique est également provoqué par la présence de domaines. Par contre, pour des raisons de structure cristalline, l'angle de la polarisation entre deux domaines ne peut prendre que 4 valeurs :  $71^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $109^\circ$  et  $180^\circ$ . On peut également noter que seul le retournement de domaines à  $180^\circ$  n'entraîne pas de déformations la maille du cristal (phénomène d'hystérésis). Avec le temps, il peut y avoir un effet de vieillissement provoqué par des sollicitations externes mécaniques, électriques et thermiques. Ce vieillissement est généralement du à une stabilisation de certains domaines, ce qui se traduit par la présence d'un champ interne ; le cycle d'hystérésis n'est plus symétrique autour du champ nul.

Il existe également une température de Curie-Weiss  $T_0$  qui correspond à un changement de phase structurale et qui a pour conséquence de supprimer la polarisation rémanente. Le matériau devient alors paraélectrique. Au contraire de ce que l'on pourrait penser, c'est au point de Curie que la permittivité est maximum, à l'opposé du magnétisme.

L'analogie peut être poussée plus loin car il existe également des matériaux antiferroélectriques, caractérisés par deux moments dipolaires adjacents antiparallèles entre eux. L'application d'un champ électrique suffisamment intense peut permettre de passer



d'une phase antiferroélectriques à ferroélectrique, tous les dipôles sont parallèles entre eux ; on a un cycle d'hystérésis autour du champ positif et négatif de la transition.

Il existe aussi des matériaux ferriélectriques, où deux réseaux, un ferroélectrique, l'autre antiferroélectrique coexistent. Il peut alors y avoir des phénomènes non réciproques, comme pour les ferrimagnétiques.

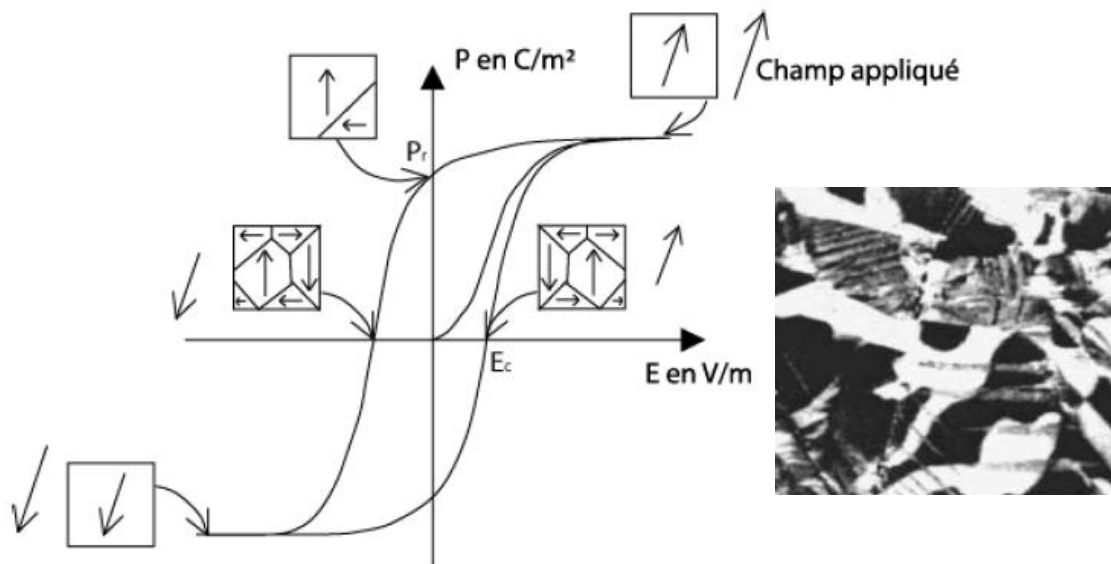


Figure 20 : Représentation d'un cycle d'hystérésis d'un matériau ferroélectrique et illustration de domaines ferroélectriques mesurés par TEM

### 4.3) Couches minces

Les couches minces ont comme en magnétisme permis d'explorer les comportements des diélectriques à très petite échelles. La notion de contraintes et déformations prend alors toute sa dimension, ces phénomènes étant mis en avant par les très faibles épaisseurs.

On trouve cependant plusieurs différences entre propriétés volumiques et couches minces, résumées figure 21.a :

- la permittivité dépend beaucoup des conditions de dépôts, elle est généralement plus faible que dans les matériaux massifs, souvent parce que les grains n'ont pas encore atteint une taille suffisante, comme on peut le voir figure 21.b. A contrario, les pertes sont fréquemment plus grandes, souvent à cause des joints de grains qui contribuent aux fuites électriques dans le matériau.

- la loi de température de Curie-Weiss n'est pas vérifiée pour la phase ferroélectrique.

- enfin, pour les matériaux ferroélectriques, on peut aussi atteindre, en diminuant suffisamment l'épaisseur, une limite analogue au ferromagnétisme : la limite superparaélectrique.

De nombreuses applications ont découlé des couches minces ferroélectriques et diélectriques : condensateurs intégrés (capacités MIM), mémoires non volatiles (FRAM), filtres à onde acoustique (SAW, BAW), micros actuateurs piézoélectriques...

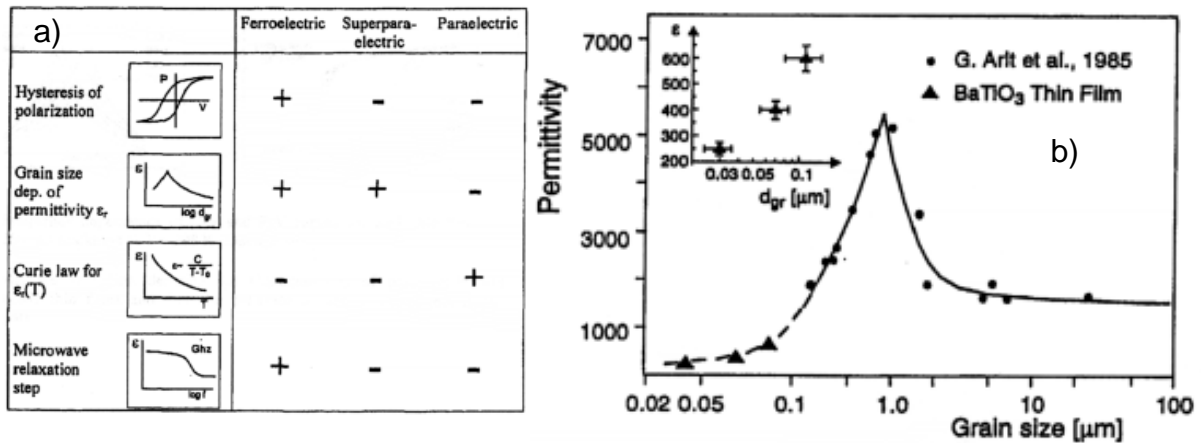


Figure 21 : a) Différents comportements électriques observés dans les couches minces [52], b) Variation de la constante diélectrique de BaTiO<sub>3</sub> avec la taille de grains à température ambiante [53].

#### 4.4) Pérovskites

Nous allons à présent nous intéresser à une famille particulière de diélectriques, les pérovskites. Les pérovskites forment une large famille de matériaux cristallins dont le nom dérive d'un minéral naturel : le titanate de calcium (CaTiO<sub>3</sub>) identifié par le minéralogiste russe L.A. Perovski. Ce sont aujourd'hui les plus utilisés en couche minces, car elles peuvent présenter des permittivités élevées, ce qui permet de miniaturiser les capacités notamment, et elles peuvent présenter un état piézoélectrique et ferroélectrique.

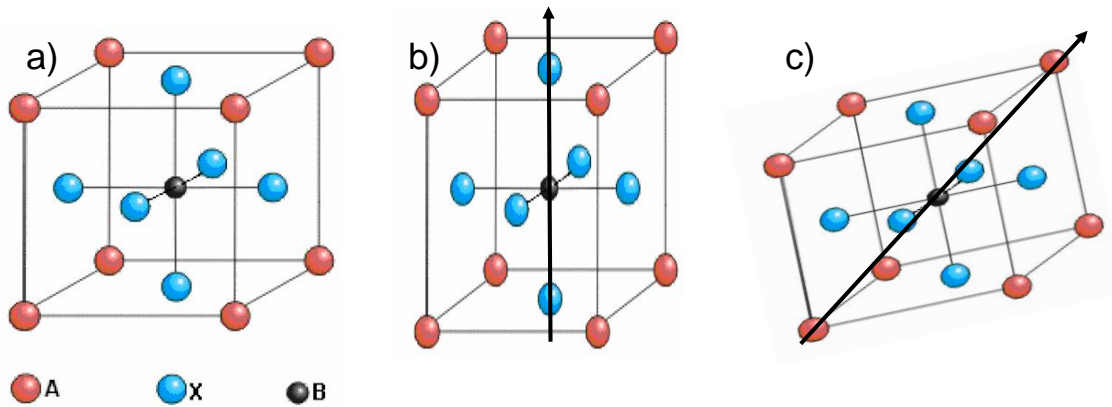
Leur structure correspond toujours à l'alliage ABX<sub>3</sub> de géométrie cubique (figure 22) où :

- A est un cation de grand rayon disposé aux sommets de la maille (par exemple Sr<sup>2+</sup>)
- B est un cation de rayon plus faible, disposé au centre de la maille (par exemple Ti<sup>4+</sup>)
- X est un anion au centre de chaque face du cube (par exemple O<sup>2-</sup>)

La maille pérovskite est à la base cubique et symétrique - il n'y a donc pas de moments dipolaires - elle est par conséquent paraélectrique. Cependant, le cation B, qui se trouve au centre de l'octaèdre formé par les ions oxygène, va avoir un rôle prépondérant dans le caractère du matériau. En effet, lors de déformations de la maille, c'est cet atome qui va avoir la liberté de mouvement et porter le moment dipolaire. A titre d'exemple, nous présentons deux autres structures pour lesquelles la phase ferroélectrique apparaît, et qui se retrouve régulièrement dans les matériaux pérovskites :

- la phase quadratique (figure 22.b) : la direction de polarisation est parallèle à la direction  $\langle 100 \rangle$  du cube de départ. Comme il existe six axes  $\langle 100 \rangle$  équivalents dans la phase cubique, l'axe polaire peut être parallèle à n'importe laquelle de ces six directions équivalentes. La maille quadratique résulte de l'élongation d'un axe du cube de départ pour devenir l'axe c, les deux autres axes étant comprimés. C'est le décalage de l'atome de B dans l'octaèdre d'X qui donne naissance à une polarisation spontanée.

- la phase orthorhombique (figure 22.c) : Cette phase résulte de la distorsion du cube de départ qui consiste en une élongation d'une des diagonales de face du cube devenant la direction orthorhombique polaire  $a$  et en une compression d'une autre diagonale de face devenant la direction orthorhombique  $b$ . Cette phase est également ferroélectrique mais la direction de la polarisation spontanée est parallèle à la direction  $\langle 110 \rangle$  du cube d'origine. Là encore, comme il y a douze directions  $\langle 110 \rangle$  équivalentes dans la phase cubique, il y a douze directions de polarisation spontanée possibles dans la phase orthorhombique.



*Figure 22 : Structure de la maille pérovskite a) Cubique, b) Quadratique, c) Orthorhombique. Les flèches représentent une direction possible de la polarisation*

## Références

- [1] Louis Néel, “*Magnetic surface anisotropy and superlattice formation by orientation*”, J. Phys. Radium Vol. 15, N°4, p. 225-239, (1954)
- [2] J. P. Nibarger, R. Lopusnik, Z. Celinski, and T. J. Silva, “*Variation of magnetization and the Landé g factor with thickness in Ni–Fe films*”, Appl. Phys. Lett. Vol. 83, p. 93 (2003)
- [3] J.A. Osborn, “*Demagnetizing factors of the general ellipsoid*”, Phys. Rev., Vol. 67, p. 351-357 (1945)
- [4] A. Aharoni, “*Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms*”, J. Appl. Phys., Vol. 83, p. 3432-3434 (1998)
- [5] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, , “*Theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies*”, Phys. Z. Sowietunion Vol. 8, p. 153 (1935)
- [6] C. Kittel, “*On the gyromagnetic ratio and spectroscopy splitting factor of ferromagnetic substances*”, Phys. Rev., Vol. 76, p. 743 (1949)
- [7] T. L. Gilbert, “*A Lagrangian formulation of gyromagnetic equation of the magnetic field*”, Phys. Rev., Vol. 100, p. 1243, (1955)
- [8] N. Bloembergen and S. Wang, “*Relaxation in para- and ferromagnetic resonance*”, Phys. Rev., Vol. 93, p. 72-83 (1954)
- [9] E. van de Riet and F. Roozeboom, “*Ferromagnetic resonance and eddy currents in high-permeable thin films*”, J. Appl. Phys. Vol. 81, p. 350 (1997)
- [10] C. Kittel, “*On the Theory of Ferromagnetic Resonance Absorption*”, Phys. Rev., Vol.73, p. 155 (1948)
- [11] C. Kittel, “*Physical Theory of Ferromagnetic Domain*”, Review of Modern Physics, Vol. 21, p. 541, (1949)
- [12] Hida Rachid. « *Etude du comportement dynamique de la perméabilité magnétique de microstructures élémentaires et de circuits fermés réalisés à partir de couches ferromagnétiques douces* ». PhD thesis, Université Claude Bernard - LYON, 2004
- [13] D.D. Stancil, “*Theory of magnetostatic waves*”, Springer, Berlin, 1993
- [14] Council Guillaume, « *Perméamétrie hyperfréquence de couches minces magnétiques* », PhD thesis, Université Paris XI ORSAY, 2005.
- [15] L. Berger, “*A simple theory of spin-wave relaxation in ferromagnetic metals*”, J. Phys. Chem. Solids., 38 (1977), p. 1321
- [16] R. McMichael, D. Twisselmann, and A. Kunz, “*Localized ferromagnetic resonance in inhomogeneous thin films*”, Phys. Rev. Lett., Vol. 90, p. 227601 (2003)
- [17] R. Arias and D. L. Mills, “*Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultra thin films*”, Phys. Rev. B, Vol. 60, p.7395 (1999)
- [18] S. M. Rezende, A. Azevedo, M. A. Lucena and F. M. Aguiar, “*Anomalous spin-wave damping in exchange bias films*”, Phys. Rev. B., Vol. 63, p. 214418 (1994)
- [19] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean, “*New Magnetic anisotropy*”, Phys. Rev, Vol. 102, p. 1413 (1956)

- [20] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean, “*New Magnetic anisotropy*”, Phys. Rev, Vol. 105, p. 904 (1957)
- [21] B. Viala, G. Visentin, and P. Gaud, “*AF-biased CoFe multilayer films with FMR frequency at 5 GHz and beyond*”, IEEE Trans. Magn., Vol. 40, p. 1996 (2004)
- [22] Yann Lamy, « *Matériaux magnétiques doux hétérogènes à combinaison d’aimantation élevée et de grande anisotropie utilisant le couplage d’échange, pour applications microondes* », PhD thesis, Université de Limoges, 2006
- [23] J. Noguès and I. K., Schuller, “*Exchange bias*”, JMMM, Vol. 192, p. 203–232 (1999)
- [24] A.E. Berkowitz and Takano Kentaro, “*Exchange anisotropy—a review*”, JMMM, Vol. 200, p. 552–570 (1999)
- [25] S. Zhang, D. Dimitrov, G. Hadjipanayis, J. Cai, and C. Chien, “*Coercivity induced by random field at ferromagnetic and antiferromagnetic interfaces*”, J. MMM. Vol. 198-199, p. 468–469 (1999).
- [26] Daniele Mauri, Eric Kay, David Scholl, and J. Kent Howard, “*Nouvel method for determining the anisotropy constant of MnFe in a NiFe/MnFe sandwich*”, J. Appl. Phys., Vol. 62, p. 2929 (1987)
- [27] R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson, J. aan de Stegge, and A. Reinders, “*Orientalional dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> bilayers*”, J. Appl. Phys., Vol. 75, p. 6659 (1994)
- [28] Néel Louis, « *Du couplage Ferro-Antiferromagnétique dans les couches minces* », Annales de Physique, Vol. 2, p. 61–80 (1967)
- [29] Takano Kentaro, Kodama R. H., Berkowitz A. E., Cao W., and Thomas G., “*Interfacial Uncompensated Antiferromagnetic Spins: Role in Unidirectional Anisotropy in Polycrystalline Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/CoO Bilayers*”, Phys. Rev. Lett., Vol. 79, p. 1130 (1997)
- [30] A.P. Malozemoff, “*Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces*”, Phys. Rev. B, Vol. 35, p. 3679, (1987)
- [31] N. C. Koon, “*Calculations of Exchange Bias in Thin Films with ferromagnetic / Antiferromagnetic Interfaces*”, Phys. Rev. Lett., Vol. 78, p. 4865 – 4868 (1997)
- [32] T. Schultess and W. Butler, “*Consequences of Spin-Flop Coupling in Exchange Biased films*”, Phys. Rev. Lett., Vol. 81, p. 4516 (1998)
- [33] A.P. Malozemoff, “*Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic / antiferromagnetic interfaces*”, Phys. Rev. B, Vol. 35, p. 3679 (1987)
- [34] A.P. Malozemoff, “*Heisenberg-to-Ising crossover in a random-field model with uniaxial anisotropy*”, Phys. Rev. B, Vol. 37, p. 7673 (1988)
- [35] Xi H. and White R. M., “*Antiferromagnetic thickness dependence of exchange biasing*”, Phys. Rev. B, Vol. 61, p. 80 (2000)
- [36] van Driel J., “*Exchange biasing by Ir<sub>19</sub>Mn<sub>81</sub> : Dependence on temperature, microstructure and antiferromagnetic layer thickness*”, J. Appl. Phys., Vol. 88, p. 975 (2000)
- [37] Nowak U., Usadel K. D., Keller J., Miltényi P., Beschoten B., and Güntherodt G., “*Domain state model for exchange bias. I. Theory*”, Phys. Rev. B, Vol. 66, p.014430 (2002)
- [38] D. Paccard, C. Schlenker, O. Massanet, R. Montmory, A. Yelon, Phys. Stat. Sol., Vol. 16 p. 301 (1966)

- [39] J. McCord, M. Roland, and D. Elefant, “*Dynamic magnetic anisotropy at the onset of the exchange bias: the NiFe/IrMn ferromagnet/antiferromagnet system*”, *Phys. Rev. B*, Vol. 70, p. 094420 (2004)
- [40] O. Acher, S. Queste, K.-U Barholz, and R. Mattheis “*High-frequency permeability of thin NiFe/IrMn layers*”, *J. App. Phys.*, Vol. 93, p. 6668 (2003)
- [41] Spenato D., Ben Youssef J., and Le Gall H., “*Spin dynamics in exchange-biased F/AF bilayers*”, *J. MMM*, Vol. 240, p. 254–256 (2002)
- [42] M. R. Fitzsimmons, P. Yashar, C. Leighton, I. K. Schuller, J. Nogués, C. F. Majkrzak, and J. A. Dura, “*Asymmetric Magnetization Reversal in Exchange-Biased Hysteresis Loops*”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 84, p. 3986 (2000)
- [43] V. I. Nikitenko, V. S. Gornakov, L. M. Dedukh, Y. P. Kabanov, A. F. Khapikov, A. J. Shapiro, R. D. Shull, A. Chaiken, and R. P. Michel, “*Asymmetry of domain nucleation and enhanced coercivity in exchange-biased epitaxial NiO/NiFe bilayers*”, *Phys. Rev. B*, Vol. 57, p. R8111 (1998)
- [44] J. McCord, R. Mattheis, and R. Schäfer, “*Kerr observations of asymmetric magnetization reversal processes in CoFe/IrMn bilayer systems*”, *J. Appl. Phys.*, Vol. 93, p. 5491 (2003)
- [45] R. D. McMichael, M. D. Stiles, P. J. Chen, and W. F. Egelhoff, Jr., “*Ferromagnetic resonance studies of NiO-coupled thin films of Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>*”, *Phys. Rev. B*, Vol. 58, p. 8605 – 8612, (1998)
- [46] T. Pokhil, S. Mao, and A. Mack, “*Study of exchange anisotropy in NiFe/NiMn and NiFe/IrMn exchange coupled films*”, *J. Appl. Phys.*, Vol. 85, p. 4916 (1999)
- [47] R. Arias and D. L. Mills, “*Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultra thin films*”, *Phys. Rev. B*, Vol. 60, p.7395 (1999)
- [48] S. M. Rezende, A. Azevedo, M. A. Lucena and F. M. Aguiar, “*Anomalous spin-wave damping in exchange bias films*”, *Phys. Rev. B.*, Vol. 63, p. 214418 (1994)
- [49] S. Havriliak and S. Negami., “*A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers*”, *Polymer*, Vol. 8, p. 161 (1967)
- [50] A. K. Jonscher, “*Dielectric relaxation in solids*”, *J. Phys. D Appl. Phys*, Vol. 32 (1999)
- [51] K. S. Cole and R. H. Cole, “*Dispersion and Absorption in dielectrics*”, *J. Chem. Phys.*, Vol.9, p. 341-351 (1941)
- [52] R. Waser, O. Lohse, “*Electrical characterization of ferroelectric, paraelectric, and superparaelectric thin films*”, *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 21, p. 27-40 (1998)
- [53] R. Waser, “*Dielectric analysis of integrated ceramic thin film capacitors*”, *Integrated Ferroelectrics*, Vol15, p. 39-51 (1997)

## **Chapitre II : Méthodes de caractérisation**

<b>I) Techniques de mesures RF</b>	<b>70</b>
1.1) Paramètres S	70
1.2) Propagation TEM	71
1.3) Lignes de transmission – Modèle de propagation	71
1.4) Lignes de transmission – Modèle électrique RLCG	72
1.5) Analyseur de réseau vectoriel – VNA	73
1.6) Calibrage	73
1.7) Epluchage (De-embedding)	73
<b>II) Perméamétrie en monospire</b>	<b>74</b>
2.1) Modèle électrique	75
2.2) Modèle de propagation	76
<b>III) Perméamétrie en lignes coplanaires</b>	<b>78</b>
3.1) Lignes coplanaires (CPW)	78
3.2) Types de CPW utilisés	79
3.3) Méthode de Barry	80
3.4) Modèle RLCG « revu »	81
3.5) Ondes de spin et augmentation de l’amortissement	84
3.6) CPW intégrées et champs démagnétisants	85
<b>IV) Post traitements numériques</b>	<b>85</b>
4.1) Fonction d’ajustement préalable à la mesure de perméabilité	86
4.2) Application à la monospire et aux lignes CPW	86
4.3) Extraction de paramètres	87
4.4) FMR de systèmes couplés AF	88
4.5) Monospire : au-delà de $f_c$	89
<b>V) Caractérisation des diélectriques</b>	<b>89</b>
5.1) Capacité MIM et applications	89
5.2) Dépendances en tension	91
5.3) Méthodes de mesure de la permittivité	92
a) Effets de bord	93
b) Dépendance fréquentielle	93
<b>Références</b>	<b>95</b>

La toute première technique pour mesurer la perméabilité, encore très utilisée aujourd'hui, est apparue dans les années 50 : la méthode de cavité résonante, encore appelée FMR (ferromagnetic resonance). On place l'échantillon dans une cavité résonante dans le domaine micro-onde et on mesure la puissance réfléchi. Cette mesure est extrêmement sensible car le facteur de qualité de la cavité est généralement très élevé. Cependant, la résonance de la cavité est quasi-fixe, cette mesure n'est donc pas large bande. On doit alors balayer en champ afin de pouvoir extraire des informations physiques (champ résonant, largeur de raie), et donc modifier la structure magnétique de l'échantillon. Enfin, avec cette technique, on n'est sensible qu'à la partie imaginaire de la susceptibilité.

Les techniques de mesure inductive guidées d'ondes micro-ruban, coplanaire ou coaxiales... sont exploitées depuis les années 60. On cherche ici à détecter le flux résultant de la précession de l'aimantation de l'échantillon réagissant au champ RF d'une ligne de transmission. Ce type de mesures est par excellence large bande, jusqu'à la fréquence de coupure (LC) du dispositif. Avec ces techniques, on mesure la réponse vectorielle, c'est-à-dire l'amplitude et la phase de l'onde. On accède donc à la perméabilité complexe. On peut également faire des mesures en fonction d'un champ magnétique externe. La réponse est donc plus riche d'une manière générale, mais limitée par la fréquence de coupure du guide. Enfin, la sensibilité de l'appareil mesurant les paramètres de l'onde électromagnétique est cruciale pour l'étude de couches minces ferromagnétiques, ainsi que la propagation des différents modes dans le guide.

Nous allons détailler dans ce chapitre deux techniques de perméamétrie large bande : en monospire et en guide d'onde coplanaire (CPW). Je précise que ces techniques ont été ici revisitées profondément car les modes opératoires dont disposait le laboratoire au début de cette thèse ne permettaient d'explorer la plage supérieure à 4 GHz. Or, ceci est crucial pour les objectifs affichés ici. Puis, nous parlerons des techniques plus classiques utilisées pour caractériser la permittivité quasi-statique et dynamique des diélectriques. La caractérisation très haute fréquence (> 10 GHz) ne sera pas abordée car hors de la plage d'intérêt.

## I) **Techniques de mesures RF**

### 1.1) **Paramètres S**

Les techniques de mesure RF utilisent ce que l'on appelle les paramètres S (scattering parameters) afin de caractériser un composant par ses coefficients de réflexion et de transmission. Les paramètres  $S_{ij}$  symbolisent un rapport entre les ondes entrantes ( $a_i$ ) et sortantes ( $b_i$ ) d'un système à N entrées. En pratique, nous nous intéresserons à des systèmes à une ou deux entrées (mesures 1 ou 2 ports), comme montré figure 1. On écrit la relation entre ondes entrantes, sortantes et les grandeurs  $S_{ij}(f)$  (complexes) en fonction de la fréquence pour un quadripôle :

$$\begin{bmatrix} b_1 \\ b_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11}(f) & S_{12}(f) \\ S_{21}(f) & S_{22}(f) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 1})$$



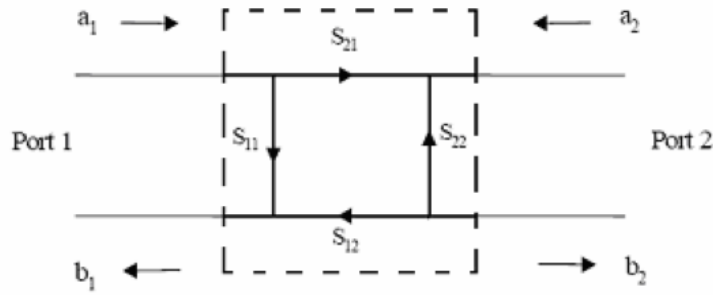


Figure 1 : Définition des paramètres  $S$  pour un quadripôle

## 1.2) Propagation TEM

On peut définir un mode de propagation, appelé TEM (transverse électromagnétique), où les champs RF électrique  $e$ , magnétique  $h$  et le vecteur de propagation  $k$  forment un trièdre direct. Il n'existe donc qu'un mode de propagation ce qui, d'une part, simplifie l'extraction des paramètres et, d'autre part, assure un seul type d'excitation magnétique. La constante de propagation et l'impédance caractéristique s'écrivent alors simplement :

$$\gamma = 2\pi f \sqrt{\mu_0 \epsilon_0 \mu_{eff} \epsilon_{eff}} = \frac{2\pi f}{c_0} \sqrt{\mu_{eff} \epsilon_{eff}} \quad (\text{Eq. 2})$$

$$Z_c = \sqrt{\frac{\mu_0 \mu_{eff}}{\epsilon_0 \epsilon_{eff}}} = Z_0 \sqrt{\frac{\mu_{eff}}{\epsilon_{eff}}} \quad (\text{Eq. 3})$$

avec  $f$  la fréquence,  $c_0$  vitesse de la lumière,  $Z_0$  impédance du vide,  $\mu_{eff}$  et  $\epsilon_{eff}$  perméabilité et permittivité effectives relatives du système. On cherchera donc à utiliser des lignes de transmission TEM, l'extraction de la perméabilité et de la permittivité effective en sera plus simple.

## 1.3) Lignes de transmission – Modèle de propagation

Dans le cas d'une propagation TEM, on peut calculer facilement les paramètres  $S$  d'une ligne de transmission en fonction de sa propagation ainsi que son impédance caractéristique, et réciproquement. Pour cela, on utilise les matrices de transfert permettant de multiplier (chainer) simplement les matrices de propagation et de réflexion, et qui peuvent ensuite être reliées aux paramètres  $S$ . On considère une réflexion  $R$  possible à l'entrée de la ligne et une réflexion  $-R$  à la sortie. L'onde se propage dans la ligne de transmission de longueur  $l$  avec un vecteur d'onde  $k$  (figure 2).

$$T = \begin{bmatrix} (1-R)^{-1} & R(1-R)^{-1} \\ R(1-R)^{-1} & (1-R)^{-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{ikl} & 0 \\ 0 & e^{-ikl} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (1+R)^{-1} & -R(1+R)^{-1} \\ -R(1+R)^{-1} & (1+R)^{-1} \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 4})$$

$$T = \frac{1}{1-R^2} \begin{bmatrix} e^{ikl} - R^2 e^{-ikl} & -R(e^{ikl} - e^{-ikl}) \\ R(e^{ikl} - e^{-ikl}) & e^{-ikl} - R^2 e^{ikl} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{21}^{-1} & S_{22} S_{21}^{-1} \\ S_{11} S_{21}^{-1} & (S_{12} S_{21} - S_{11} S_{22}) S_{21}^{-1} \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 5})$$

Alors, en considérant un système réciproque, on obtient :

$$S_{12} = S_{21} = \frac{(1-R^2)e^{-ikl}}{1-R^2 e^{-2ikl}} \quad \text{et} \quad S_{11} = S_{22} = \frac{R(1-e^{-2ikl})}{1-R^2 e^{-2ikl}} \quad (\text{Eq. 6 et 7})$$

Ou bien, dans la pratique, pour calculer la constante de propagation de l'onde  $\gamma$  et son impédance caractéristique  $Z_c$ , avec  $Z_0$  impédance du dispositif guidant l'onde (généralement  $50 \Omega$ ) :

$$\gamma = \frac{1}{l} \cosh^{-1} \left( \frac{(1-S_{11})(1+S_{22}) + S_{12}S_{21}}{S_{12} + S_{21}} \right) \quad \text{et} \quad Z_c = Z_0 \sqrt{\frac{(1+S_{11})(1+S_{22}) + S_{12}S_{21}}{(1-S_{11})(1-S_{22}) - S_{12}S_{21}}} \quad (\text{Eq. 8 et 9})$$

Et

$$\gamma = ik \quad \text{et} \quad Z_c = Z_0 \frac{1-R}{1+R} \quad (\text{Eq. 10 et 11})$$

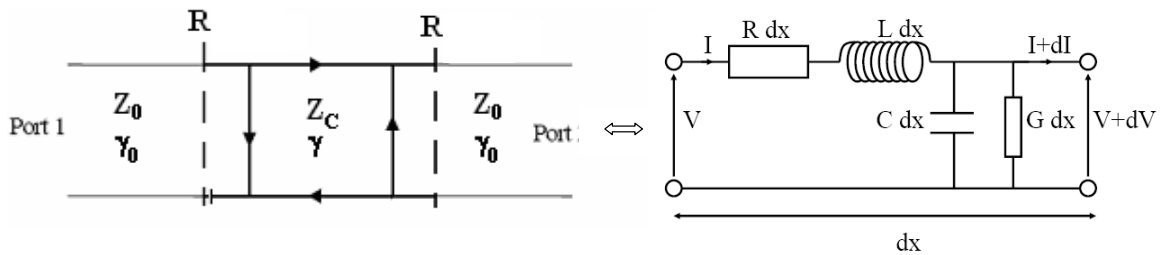


Figure 2 : Schématisation d'une ligne de transmission et de son analogie en modèle électrique RLCG.

#### 1.4) Lignes de transmission – Modèle électrique RLCG

Il est possible de modéliser la ligne de transmission par des éléments électriques distribués RLCG, comme montré figure 2, avec  $R$  (résistance) et  $L$  (inductance) éléments qui caractérisent la partie conductrice,  $C$  (capacité) et  $G$  (conductance) la partie diélectrique. On trouve alors :

$$\gamma = \sqrt{(R+iL2\pi f)(G+iC2\pi f)} \quad \text{et} \quad Z_c = \sqrt{\frac{(R+iL2\pi f)}{(G+iC2\pi f)}} \quad (\text{Eq. 12 et 13})$$

Ce modèle est très utile, car il permet de rajouter des éléments pour tenir compte de la perméabilité et de la permittivité d'une ligne associée à un substrat multicouches. Un modèle pour un substrat magnéto-diélectrique en couches minces a été développé par E. Bènevent [1] et sera détaillé plus loin.

### **1.5) Analyseur de réseau vectoriel – VNA**

L'analyseur de réseau (VNA – Vectorial Network Analyser) est constitué d'une source hyperfréquence accordable (synthétiseur), d'un coupleur directionnel, et d'un récepteur accordé (50 Ω). Le signal délivré par la source hyperfréquence est d'abord séparé entre une branche de référence et une branche connectée au dispositif étudié. La tension de référence, la tension réfléchiée séparée par le coupleur directionnel, et la tension transmise sont ensuite mélangées avec une onde de fréquence légèrement différente de manière à être ramenées dans les fréquences de l'ordre de quelques dizaines de MHz, pour ensuite effectuer la détection vectorielle. On parle de mesure vectorielle lorsque l'on mesure en deux ports ou plus.

### **1.6) Calibrage**

En général, il est nécessaire d'effectuer un calibrage, afin de ramener la référence de l'onde aux bornes du système, et ainsi s'affranchir des perturbations amenées par les guides d'onde et la connectique reliant le système au VNA (pertes, désadaptation, longueur de propagation). Il existe plusieurs méthodes de calibration ; celle que nous utiliserons est appelée SOLT et consiste à référencer un court-circuit (Short), un circuit ouvert (Open), une charge de référence d'impédance (Load), 50 Ω généralement, et une transmission (Through) dans le cas de mesure à deux ports. La réponse fréquentielle de ces éléments est parfaitement connue et un programme de calcul implémenté dans l'appareil corrige les mesures. Ce calibrage est critique afin de caractériser finement le système mesuré. On peut prendre des critères à partir desquels le calibrage est correct, comme par exemple  $S_{11/22} < -60$  dB lorsque connecté à la charge 50 Ω. Les mesures RF sont très sensibles et tout mouvement de câble, changement de connectique et de variation de la température (quelques degrés) nécessitera de recommencer la calibration.

### **1.7) Épluchage (De-embedding)**

Selon le type de mesures et, notamment, pour les dispositifs intégrés tels que des lignes de transmission, il existe des plots d'accès à l'objet sous test (DUT - Device Under Test). Il est alors nécessaire de faire un épluchage (de-embedding), c'est-à-dire ramener le plan de référence de l'onde à l'entrée du dispositif, en corrigeant les éléments parasites tels que les résistances de contact, les capacités et les inductances dues aux lignes d'accès. Cette approche consiste à déterminer un schéma équivalent des éléments d'accès, au travers des matrices d'admittance (Y) et d'impédance (Z) que l'on peut relier aux paramètres S [2]. La fabrication d'un motif Short et d'un motif Open, aux dimensions des plots d'accès permet de résoudre le schéma équivalent. Encore une fois, il existe plusieurs façons de représenter le schéma équivalent ; nous utiliserons la méthode Short-Open [3,4]. Dans ces conditions, on écrit :

$$Y_{DUT} = \frac{1}{Y_{measure} - Z_{short}} - \frac{1}{Y_{open} - Z_{short}} \quad (\text{Eq. 14})$$

A titre d'exemple, sur des lignes coplanaires intégrées, nous avons mesuré une impédance de ligne à  $60 \Omega$  ; elle valait  $80 \Omega$  après de-embedding.

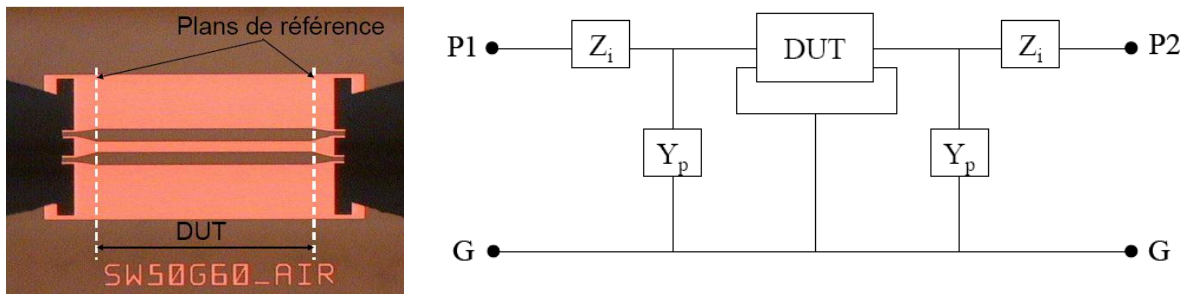


Figure 3 : Photo d'une CPW mesurée sous pointes avec en pointillés le plan de référence après de-embedding. Schéma : circuit équivalent pour le de-embedding,

## II) Perméamétrie en monospire

La monospire est un objet extrêmement simple qui permet de mesurer facilement et rapidement la perméabilité de couches minces. Cette boucle est en réalité une ligne de transmission court-circuitée à propagation TEM. Les mesures se font donc en réflexion, c'est-à-dire sur un seul port du VNA (par exemple  $S_{11}$ ). La monospire permet de caractériser la perméabilité sur une large bande de fréquence. Elle est cependant limitée par une résonance de type LC qui dépendra des dimensions de la monospire. Ici, nous utiliserons une monospire de 4 mm de long et 2.5 mm de hauteur, ayant une fréquence de résonance ( $f_c$ ) à environ 7 GHz. Nous verrons par la suite qu'il est possible d'outrepasser cette résonance pour mesurer sur une plus large bande, bien que la sensibilité en soit affectée.

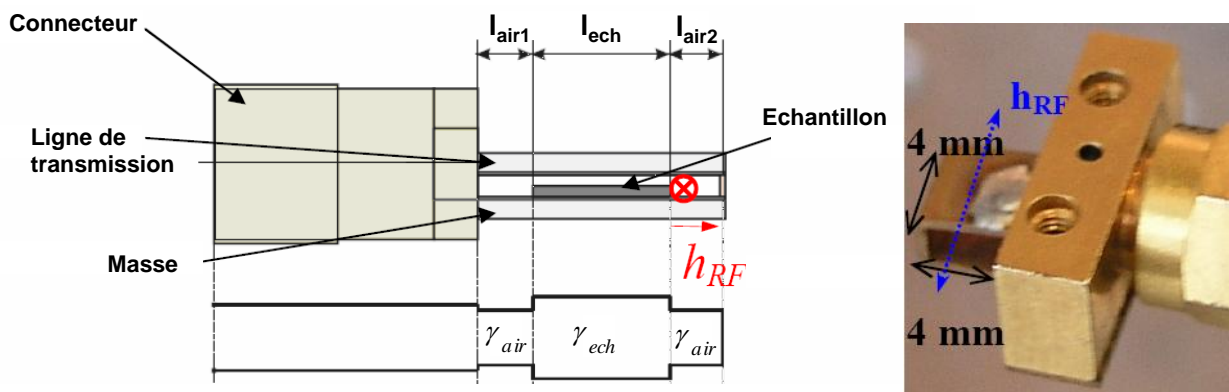


Figure 4 : Schématique de la monospire et photo d'un dispositif expérimental

La schématique d'une monospire est détaillée figure 4. On insère l'échantillon à mesurer au centre de la cavité. Le champ magnétique RF ( $h_{RF}$ ) est dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire à la ligne de transmission, le champ électrique lui est perpendiculaire.

Il existe deux méthodes pour extraire la perméabilité : une première, basée sur un modèle électrique simplifié, une deuxième basée sur un modèle de propagation. Cette dernière est plus rigoureuse car prenant en compte la résonance de la monospire.

## 2.1) Modèle électrique

Un modèle électrique RLCG pour modéliser une monospire est compliqué à mettre en œuvre et nécessite des techniques numériques. C'est pourquoi, on se contente souvent d'un modèle RL, qui suppose que la capacité est négligeable. Ceci est vrai jusqu'à l'approche de la résonance de la monospire  $f_c$  et c'est pourquoi il est souvent nécessaire, avec ce modèle simplifié, de travailler au maximum jusqu'à  $f_c/5$ . On cherche à mesurer l'impédance caractéristique du système, qui s'écrit :

$$Z_c = Z_0 \frac{1 - S_{11}}{1 + S_{11}} \quad (\text{Eq. 15})$$

On réalise la mesure en deux étapes :

- $Z_{c,mag}$  : monospire chargée par le matériau magnétique
- $Z_{c,sat}$  : monospire chargée par le matériau magnétique saturé ici par l'application d'un champ magnétique, appliqué dans le sens du champ RF pour saturer l'échantillon ( $\mu=1$ )

On obtient ainsi une variation d'impédance :

$$\Delta Z = Z_{c,mag} - Z_{c,sat} \quad (\text{Eq. 16})$$

La norme du champ hyperfréquence  $\vec{h}_{rf}$  est proportionnelle à la norme du courant  $\vec{i}_{rf}$  traversant la spire de longueur  $l$  :

$$|\vec{h}_{rf}| = C \frac{|\vec{i}_{rf}|}{l} \quad (\text{Eq. 16})$$

On peut relier la variation de tension  $\Delta V$  à la variation de flux  $\Delta\phi$  entre la mesure magnétique et la mesure saturée par la loi de Faraday :

$$\Delta V = i2\pi f \Delta\phi = i2\pi f \mu_0 (\mu_r - 1) \vec{h}_{rf} l e \quad (\text{Eq. 17})$$

où  $e$  est l'épaisseur du film magnétique. On peut alors calculer la variation d'impédance entre les deux mesures :

$$\Delta Z = \frac{\Delta V}{|\vec{i}_{rf}|} = i2\pi f \mu_0 (\mu_r - 1) e C \quad (\text{Eq. 18})$$

On trouve donc une expression de la perméabilité normalisée au volume  $V$ , à laquelle nous rajoutons une constante  $K$  qui permet d'approximer le début de la contribution capacitive :

$$\mu_r = 1 + \frac{\Delta Z}{2\pi f} \frac{KC'}{\mu_0 V} \text{ avec } K = \left(1 - \left(\frac{f}{f_c}\right)^2\right)^2 \quad (\text{Eq. 19})$$

Le facteur de calibrage  $C'$  est tout simplement trouvé en utilisant un échantillon référence donc on connaît parfaitement la perméabilité à l'origine ou bien en mesurant les propriétés statiques de l'échantillon sachant que :

$$\mu_{dc} = 1 + \frac{M_s}{H_{eff}} \quad (\text{Eq. 20})$$

## 2.2) Modèle de propagation

Nous allons détailler ici, à partir de l'article de Bekker et al. [5] la méthode, basée sur la théorie des lignes, permettant d'extraire la perméabilité de l'échantillon mesuré. La réflexion d'une portion de ligne s'écrit simplement :

$$R = R_0 e^{-2\gamma l} \stackrel{\text{Monospire}}{\Rightarrow} S_{11} = -e^{-2\gamma l} \quad (\text{Eq. 21})$$

Le coefficient réflexion  $\mathbf{R} = \mathbf{S}_{11}$  si la référence est ramenée à l'entrée de la ligne. Ici,  $\mathbf{R}_0 = -\mathbf{1}$  car la ligne est court-circuitée. La portion de ligne  $l$  est traversée par l'onde, caractérisée par la constante de propagation  $\gamma$ . De plus, la ligne est partagée en trois portions : les deux régions latérales où l'onde se propage dans l'air ( $l_{air}$ ,  $\gamma_{air}$ ) et la région centrale où l'onde se propage dans l'échantillon ( $l_{ech}$ ,  $\gamma_{ech}$ ). Alors, on peut réécrire l'équation de propagation dans la monospire comme suit :

$$\gamma l = \gamma_{air} l_{air1} + \gamma_{ech} l_{ech} + \gamma_{air} l_{air2} = \gamma_{air} (l_{total} - l_{ech}) + \gamma_{ech} l_{ech} = \gamma_{air} l_{air} + \gamma_{ech} l_{ech} \quad (\text{Eq. 22})$$

On va donc ici effectuer la mesure en trois étapes afin de soustraire toutes les contributions non magnétiques à la mesure :

- **Monospire à vide  $S_{11}^{air}$  sans champ magnétique** : on identifie la constante diélectrique de l'intégralité de la monospire, et on détermine ainsi celle de la portion à l'air  $l_{air}$  :

$$\gamma l = \gamma_{air} l_{air} = \frac{i2\pi f}{c_0} l_{air} \sqrt{\epsilon_{eff}^{air}} \quad (\text{Eq. 23})$$

$$\epsilon_{eff}^{air} = \left( \frac{c_0 \ln(-S_{11}^{air})}{i2\pi f 2l_{air}} \right)^2 \quad (\text{Eq. 24})$$

- **Monospire à vide  $S_{11}^{air/Champ}$  avec champ magnétique** : souvent, la connectique RF, et notamment la pointe du connecteur, contient une finition magnétique, généralement du nickel. Lorsque l'on n'applique pas de champ magnétique, cette contribution peut être

négligeable. Cependant, lorsque l'on applique un champ, on peut voir apparaître une résonance due à la polarisation de la pointe RF par le champ.

Afin de supprimer ces effets, on applique le même champ magnétique à la cellule à vide que celui de la mesure sous champ (saturation ou balayage en FMR). On pourra ainsi calculer la perméabilité de la pointe  $\mu_{eff}^{Saturation}$  et  $\mu_{eff}^{FMR}$  et en tenir compte dans les calculs (en supposant que sans application de champ, il n'y a pas de perméabilité). On mesure alors :

$$\gamma l = \gamma_{air} l_{air} = \frac{i2\pi f}{c_0} l_{air} \sqrt{\epsilon_{eff}^{air} \mu_{eff}^{air}} \quad (\text{Eq. 25})$$

$$\mu_{eff}^{air} = \frac{1}{\epsilon_{eff}^{air}} \left( \frac{c_0 \ln(-S_{11}^{air/Champ})}{i2\pi f 2l_{air}} \right)^2 \quad (\text{Eq. 25})$$

- **Monospire avec échantillon avec un champ de saturation  $S_{11}^{sub}$  ( $\mu_{eff}=1$ )** : on identifie ainsi la constante diélectrique due au substrat et à la conduction :

$$\gamma l = \gamma_{air} l_{air} + \gamma_{ech}^{sub} l_{ech} = \frac{i2\pi f}{c_0} l_{ech} \sqrt{\epsilon_{eff}^{sub} \mu_{eff}^{Saturation}} + \frac{i2\pi f}{c_0} l_{air} \sqrt{\epsilon_{eff}^{air} \mu_{eff}^{Saturation}} \quad (\text{Eq. 26})$$

$$\epsilon_{eff}^{sub} = \left( \frac{c_0 \ln(-S_{11}^{sub})}{i2\pi f 2l_{ech}} - \frac{l_{air}}{l_{ech}} \sqrt{\epsilon_{eff}^{air} \mu_{eff}^{Saturation}} \right)^2 \frac{1}{\mu_{eff}^{Saturation}} \quad (\text{Eq. 27})$$

- **Monospire avec échantillon pour déterminer la perméabilité  $S_{11}^{mag}$  (éventuellement sous champ magnétique)** :

$$\gamma l = \gamma_{air} l_{air} + \gamma_{ech}^{mag,sub} l_{ech} = \frac{i2\pi f}{c_0} l_{ech} \sqrt{(\mu_{eff}^{mag} + \mu_{eff}^{airFMR}) \epsilon_{eff}^{sub}} + \frac{i2\pi f}{c_0} l_{air} \sqrt{\mu_{eff}^{airFMR} \epsilon_{eff}^{air}} \quad (\text{Eq. 28})$$

$$\mu_{eff}^{mag} = \left( \frac{c_0 \ln(-S_{11}^{mag})}{i2\pi f 2l_{ech} \sqrt{\epsilon_{eff}^{sub}}} - \frac{l_{air} \sqrt{\epsilon_{eff}^{air} \mu_{eff}^{FMR}}}{l_{ech} \sqrt{\epsilon_{eff}^{sub}}} \right)^2 - \mu_{eff}^{airFMR} \quad (\text{Eq. 29})$$

Enfin, on peut calibrer la mesure en incluant un facteur  $K'$  qui sera dépendant de la monospire utilisée, et en tenant compte de l'épaisseur de l'échantillon en normalisant au volume  $V_{ech}$ , ainsi que de la hauteur  $h$  de la cavité de la monospire :

$$\mu_r = \mu_{eff}^{mag} \frac{K' h}{V_{ech}} \quad (\text{Eq. 30})$$

**Nous attirons ici l'attention de l'expérimentateur :**

- la mesure en monospire est très influencée par son environnement extérieur ; c'est une petite antenne extrêmement sensible à toute perturbation. Ainsi, sur deux mesures

consécutives, si l'environnement électromagnétique a changé, on peut observer des perturbations sur la mesure, notamment au niveau de la résonance de la monospire. L'utilisation d'une chambre anéchoïde ou de mousses absorbantes peut aider à résoudre ce problème.

- il existe un certain délai électrique dû à la longueur de la pointe RF du connecteur et n'est pas compensé par le calibrage. Il est possible de corriger ce délai sur un analyseur de réseau en connectant le même type de connecteur RF que celui de la monospire, mais étant court-circuité à son extrémité. On regarde le paramètre  $S_{11}$  du court circuit sur abaque de Smith, et on corrige le délai électrique manuellement jusqu'à ce que la courbe soit ramenée à un point en son centre (« short » parfait).
- la fonction logarithme népérien complexe, et d'une manière générale toute fonction complexe peut être multi-valeurs. En effet, lorsque la phase a effectué une rotation complète, il peut y avoir saut de phase : le point peut aussi bien être 0 ou  $2\pi$ . On prendra donc soin de dérouler la phase pour qu'il n'y ai pas de discontinuité. Le saut de phase apparaît en général à la résonance dimensionnelle du système.
- la nature du substrat a une grande influence et l'utilisation de substrats isolants est largement préférable. Cependant, la microélectronique impose des substrats de silicium, qui même oxydés présentent des pertes importantes. Nous utiliserons donc préférentiellement des substrats de silicium à haute résistivité (3-5 k $\Omega$ ).

### III) Perméamétrie en lignes coplanaires

La perméamétrie en guide d'onde coplanaire est un outil extrêmement puissant, mais son utilisation pour caractériser des matériaux magnétiques en couche mince est encore récente et suscite toujours certaines interrogations sur la perméabilité extraite de ces mesures.

#### 3.1) Lignes coplanaires (CPW)

Les lignes coplanaires sont par excellence des guides d'ondes intégrables. Elles sont de faible coût technologique (un seul niveau de métal), facilement réalisables et propagent un mode quasi-TEM. La structure originale a été proposée par Wen en 1969 [6]. Elle est constituée d'un ruban métallique qui transporte le signal, séparant deux rubans métalliques latéraux faisant office de masse. L'espace entre plan de masse et ruban est appelé fente ou gap. Le champ magnétique RF est quasi planaire au dessus du ruban central, et tourne autour du ruban (figure 4). Le champ électrique est quasi-planaire dans les gaps, et se boucle du ruban vers les plans de masse.

Le rapport entre les gaps  $G$ , la largeur du ruban  $W$  et l'épaisseur (et la nature) du substrat et de la métallisation permet de dimensionner la CPW afin qu'elle soit adaptée à 50  $\Omega$ . En première approche, on peut modéliser le comportement de la ligne CPW par le modèle RLCG [7] dans l'approximation TEM, mais des simulations électromagnétiques sont à effectuer pour être réellement prédictif.



Les lignes CPW présentent des résonances dimensionnelles lorsque leur longueur est de l'ordre d'une fraction de longueur d'onde, par exemple demi-onde, c'est-à-dire qu'à une certaine fréquence l'onde est stationnaire et on observe un pic d'absorption sur la transmission. Cette résonance peut être pénalisante pour les mesures de perméamétrie. Elle est dépendante de la longueur  $l$  de la CPW, ainsi que de la permittivité et de la perméabilité effective de son substrat, ce dernier pouvant être multicouche (par exemple Si/SiO<sub>2</sub>)

$$f_{\lambda/2} = \frac{c}{2l\sqrt{\mu_{eff}\epsilon_{eff}}} \quad (\text{Eq. 31})$$

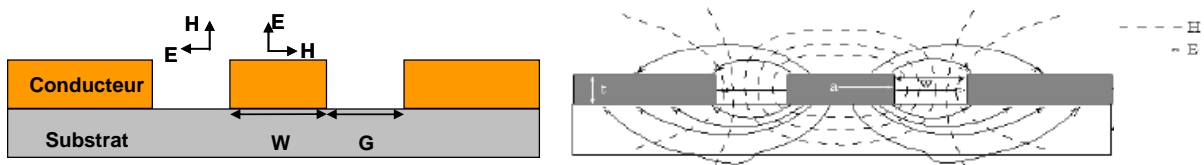


Figure 4 : Représentation schématique d'une ligne coplanaire et des champs RF  $E$  et  $H$  associés.

### 3.2) Types de CPW utilisés

Nous allons présenter deux types de guides d'ondes coplanaires que nous avons utilisés au cours de la thèse. Les premiers sont des dispositifs intégrés, donc à utilisation unique, les seconds sont macroscopiques, ils permettront de caractériser différents matériaux. Ces lignes sont fabriquées sur substrat de silicium à haute résistivité, préalablement oxydé en surface.

- Lignes intégrées : par intégré, on entend que le matériau magnétique est solidaire de la ligne après procédé de structuration classique (lithographie, gravure). Elles ont été développées au cours du travail de DRT de J-P. Michel [8]. Elles font 1 mm de long, la résonance dimensionnelle est donc repoussée aux alentours de 40 GHz. Le ruban central varie de 5 à 150  $\mu\text{m}$ . La métallisation consiste en un dépôt de Cu d'épaisseur de 2  $\mu\text{m}$  avec un procédé damascène (Cu + SiO<sub>2</sub>).

- Lignes macroscopiques : par macroscopique, on entend que le matériau magnétique peut être reporté manuellement. Leur longueur est de 2 et 3 cm. Leur résonance dimensionnelle se trouve donc entre 3 et 2 GHz respectivement. Le ruban central est de 100  $\mu\text{m}$ , les gaps de 50  $\mu\text{m}$ , et la métallisation est relativement faible pour des facilités technologiques (1  $\mu\text{m}$  Au), il y a donc plus de pertes. Le substrat est en silicium. On peut y placer un échantillon (figure 5), et le caractériser.

- Lignes macroscopiques intégrées : on intègre sur les lignes macroscopiques décrites précédemment un matériau afin d'observer sa contribution à la propagation, et ainsi la réduction de résonance dimensionnel, ce qui est l'objet de la thèse. Ces lignes, bien que non idéales sont fabriquées extrêmement rapidement, elles sont donc très utiles pour caractériser nos empilements et leurs effets sur la propagation.

Toutes ces lignes ont été dessinées pour être mesurée sous pointes GSG (Ground-Signal-Ground).

### 3.3) Méthode de Barry

Nous allons ici présenter une méthode développée dans les années 80 par W. Barry [9] pour extraire la perméabilité et la permittivité de matériaux avec une ligne de transmission de type micro ruban. En règle générale, l'échantillon n'est pas centré. Les paramètres  $S_{11}$  et  $S_{22}$  sont donc légèrement asymétriques. Une amélioration a été apportée par Bilzer et. al [10], dont nous tenons compte également.

L'idée ici est de réadapter cette méthode à nos techniques de mesure de lignes CPW. Comme montré figure 5, on insère un échantillon de longueur  $l_e$  sur la ligne de longueur  $l_t$ . Il existe donc trois régions de propagation : deux où l'onde se propage sur la ligne à vide, sur des longueurs  $l_1$  et  $l_2$ , avec une propagation  $\gamma_0$  et une impédance caractéristique  $Z_0$ , une où se trouve l'échantillon avec une propagation  $\gamma$  et une impédance caractéristique  $Z$ .

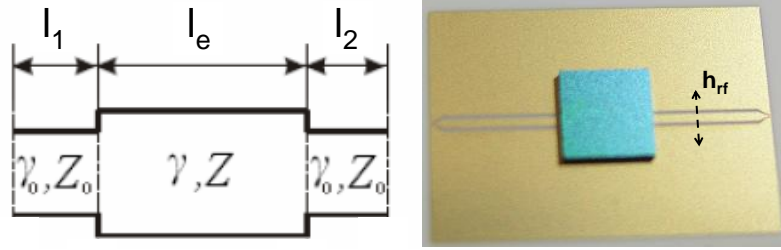


Figure 5 : Vue schématique de ligne coplanaire avec un échantillon inséré. Photo : exemple d'une ligne coplanaire utilisée pour des mesures.

On réécrit alors la matrice de transmission :

$$T = \begin{bmatrix} e^{\gamma_0 l_1} & 0 \\ 0 & e^{-\gamma_0 l_1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (1-R)^{-1} & R(1-R)^{-1} \\ R(1-R)^{-1} & (1-R)^{-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{\gamma l_e} & 0 \\ 0 & e^{-\gamma l_e} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (1+R)^{-1} & -R(1+R)^{-1} \\ -R(1+R)^{-1} & (1+R)^{-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{\gamma_0 l_2} & 0 \\ 0 & e^{-\gamma_0 l_2} \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 32})$$

On remarquera ici que l'on ne tient pas compte de la réflexion d'entrée et de sortie de la ligne ; on considère donc une ligne parfaitement adaptée, ce qui est quasiment le cas après calibration. Par contre, rajouter ces coefficients de réflexion alourdit l'expression des paramètres  $S_{ij}$ , ce qui rend impossible d'extraire analytiquement  $R$  et  $\gamma$ . On peut donc calculer la matrice  $S_{ij}$ , grâce à l'équation 5 :

$$S_{ij} = \frac{1}{1-R^2 e^{-2\gamma l_e}} \begin{bmatrix} \text{Re}^{-2\gamma_0 l_1} (1-e^{-2\gamma l_e}) & (1-R^2) e^{-\gamma_0(l_1+l_2)} e^{-\gamma l_e} \\ (1-R^2) e^{-i\gamma_0(l_1+l_2)} e^{-\gamma l_e} & \text{Re}^{-2\gamma_0 l_2} (1-e^{-2\gamma l_e}) \end{bmatrix} \quad (\text{Eq. 32})$$

L'idée apportée par Bilzer et. al est de moyenner géométriquement  $S_{11}$  et  $S_{22}$  de la façon suivante :

$$S_{11/22} = \sqrt{S_{11} S_{22}} = \text{Re}^{-\gamma_0(l_1+l_2)} (1-e^{-2\gamma l_e}) \quad (\text{Eq. 33})$$

On peut donc s'affranchir de la position de l'échantillon, puisque :

$$l_{vide} = l_1 + l_2 = l_r - l_e \quad (\text{Eq. 34})$$

Alors, on en déduit la propagation et la réflexion de l'échantillon, suivant la méthode de Barry [9], en remplaçant  $S_{11}$  par  $S_{11/22}$  :

$$\gamma = \frac{1}{i} \cos^{-1} \left( \frac{e^{-2\gamma_0 l_{vide}} + S_{12}^2 - S_{11/22}^2}{2e^{-\gamma_0 l_{vide}} S_{12}^2} \right) \quad (\text{Eq. 35})$$

$$R = \frac{S_{11/22}}{e^{-\gamma_0 l_{vide}} - S_{12}^2 e^{-\gamma l_e}} \quad (\text{Eq. 36})$$

Enfin, on peut en déduire la perméabilité et la permittivité effectives de la mesure :

$$\epsilon_{eff} = \frac{\gamma}{\gamma_0} \frac{1-R}{1+R} \quad \text{et} \quad \mu_{eff} = \frac{\gamma}{\gamma_0} \frac{1+R}{1-R} \quad (\text{Eq. 37 et 38})$$

Afin d'extraire la perméabilité intrinsèque à l'échantillon, on opère la mesure en trois étapes :

- CPW « à vide » : on calcule  $\gamma_0$  à l'aide de la formule 8.
- CPW « saturée » : mesure avec échantillon et champ magnétique de saturation ( $\mu=1$ ). On en déduit alors  $\mu_{sat}$ .
- CPW « magnétique » : mesure avec l'échantillon magnétique. On en déduit  $\mu_{mag}$ .

Alors, on peut extraire la perméabilité :

$$\mu_r = \frac{C}{V_{ech}} (\mu_{mag} - \mu_{sat}) \quad (\text{Eq. 39})$$

avec  $V_{ech}$  volume de l'échantillon et  $C$  une constante de calibration qui dépendra bien entendu de la ligne utilisée, et qui sera également calibrée à partir de la perméabilité quasi-statique théorique  $\mu_{dc}$ , par exemple.

### 3.4) Modèle RLCG « revu »

Le modèle RLCG n'est valide que si l'échantillon recouvre totalement la longueur de la ligne coplanaire. Dans ce cas, on considère en première approche une variation de l'inductance et de la résistance entre la mesure chargée et la mesure à vide. On peut alors extraire la perméabilité, à partir du produit de l'impédance caractéristique et de la propagation de la ligne :

$$\mu = Z_c^{Mag} \gamma^{Mag} - Z_c^{Vide} \gamma^{Vide} \alpha (L^{Mag} - L^{Vide}) - i \frac{(R^{Mag} - R^{Vide})}{f} \quad (\text{Eq. 40})$$

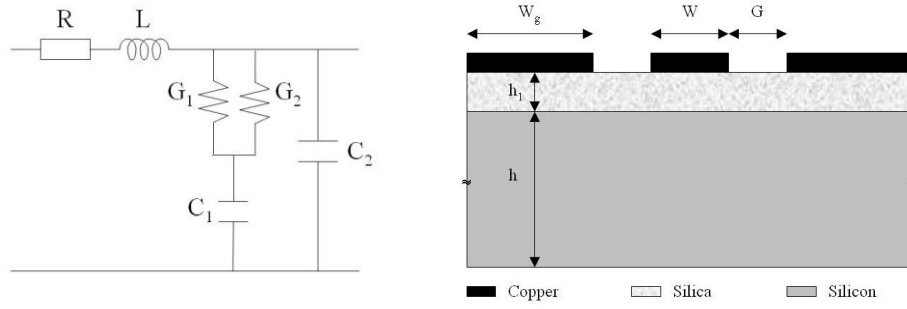


Figure 6 : guide d'onde coplanaire sur silicium oxydé et modèle électrique associé.

Associé à ce travail de thèse, un modèle plus complet a été développé par E. Bènevent au cours d'un post-doctorat, permettant de modéliser une ligne CPW sur un empilement magnéto-diélectrique en couche mince, tout en tenant compte des pertes apportées par le substrat silicium. Ce modèle est basé sur la description d'une ligne CPW sur substrat multicouche proposée initialement par Heinrich [7]. Le modèle réactualisé a été développé afin de pouvoir prédire analytiquement le comportement de lignes à résonance demi-onde, par exemple, que nous étudierons par la suite à partir de mesures. En effet, comme nous pourrions le constater par la suite, le modèle est complexe et serait quasi-impossible à ajuster à la mesure.

Tout d'abord, il est nécessaire de décrire la ligne à vide. Le schéma électrique équivalent à éléments distribués est présenté figure 6. Le calcul de L et R est explicité dans [7], ces expressions sont lourdes et changent suivant le domaine de fréquence ; nous ne les redécrivons donc pas ici. L'originalité ici est l'ajout d'une conductance linéique  $G_1$  et d'une capacité linéique  $C_1$ . Ainsi, on tient compte du caractère conducteur du silicium qui est un des paramètres clé à l'ajustement avec nos mesures. Ces paramètres s'expriment comme :

$$C_1 = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{req} (W + 2W_g)}{h} \text{ et } C_2 = 2\varepsilon_0 \varepsilon_{req} \frac{K(k)}{K(k')} \quad (\text{Eq. 41 et 42})$$

$$G_1 = 2\sigma_s \frac{K(k)}{K(k')} \text{ et } G_2 = 2\omega \varepsilon_0 \varepsilon_{req} \tan \delta_{eq} \frac{K(k)}{K(k')} \quad (\text{Eq. 43 et 44})$$

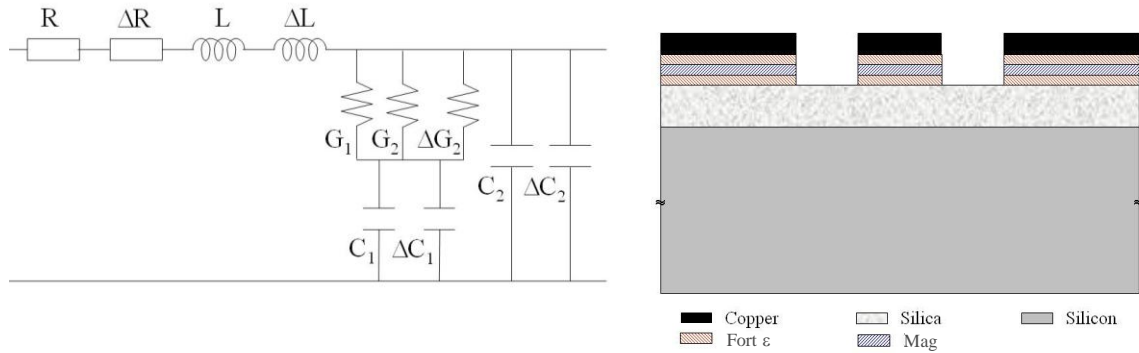
K étant l'intégrale elliptique du premier type, de paramètres k et k', qui s'expriment comme suit :

$$k = \frac{W}{W + 2G} \sqrt{\frac{1 - \left( \frac{W + 2G}{W + 2G + 2W_g} \right)^2}{1 - \left( \frac{W}{W + 2G + 2W_g} \right)^2}} \text{ et } k' = \sqrt{1 - k^2} \quad (\text{Eq. 45})$$

$\delta_{eq}$  représente les pertes diélectriques équivalentes,  $\varepsilon_{req}$  la permittivité relative équivalente du substrat,  $W_g$  est la largeur des plans de masse et G la largeur des fentes. Par équivalent, on entend la valeur effective du substrat qui est ici explicitement multicouche (Si+SiO<sub>2</sub>...)

Sur la figure 7, nous introduisons maintenant les perturbations apportées par l'empilement magnéto-diélectrique, symbolisée par  $\Delta L$  et  $\Delta R$  pour la partie magnétique, c'est-à-dire reliés respectivement aux parties réelle et imaginaire, et par  $\Delta C_1$ ,  $\Delta C_2$ ,  $\Delta G_2$  les contributions de la partie diélectrique de la permittivité de la couche diélectrique à  $\epsilon_{req}$ .

Ce modèle n'est pas physique à proprement parlé, mais il a le mérite de bien approcher les mesures, et donc d'être prédictif. Nous verrons dans le chapitre III le bon accord entre ce modèle et les mesures.



**Figure 7 : guide d'onde coplanaire chargé par un empilement magnéto-diélectrique sur silicium oxydé et modèle électrique associé.**

Il est important de préciser ici la façon dont  $\epsilon_{req}$  est déterminé. D'une manière générale, il est possible de calculer la permittivité effective de la manière suivante :

$$\epsilon_{eff} = 1 + (\epsilon_2 - \epsilon_1)q_1 + (\epsilon_3 - \epsilon_2)q_2 + \dots \quad (\text{Eq. 46})$$

avec  $q_i$  facteur de remplissage qui s'écrit [11] :

$$q_i = \frac{1}{2} \frac{K(k_i)}{K(k'_i)} \frac{K(k'_0)}{K(k_0)} \quad \text{avec} \quad k_i = \frac{\sinh\left(\frac{\pi W}{4h_i}\right)}{\sinh\left(\frac{\pi(W+2G)}{4h_i}\right)} \quad \text{et} \quad k_0 = \frac{W}{W+2G} \quad (\text{Eq. 47})$$

Cependant, dans le cadre de couches minces, ce facteur de remplissage diverge numériquement. L'astuce consiste à le déterminer d'après la mesure la permittivité effective du milieu (air et substrat). On alors utilise la méthode d'Heinrich qui suppose un substrat infini ; on s'affranchit ainsi des problèmes de divergence. On peut alors écrire :

$$\epsilon_{eff} = 1 + (\epsilon_r^{Substrat} - \epsilon_r^{air})q \quad \Rightarrow \quad \epsilon_r^{Substrat} = \epsilon_{req} = 1 + \frac{\epsilon_{eff} - 1}{q} \quad (\text{Eq. 48})$$

$$\text{Avec} \quad q = \frac{1}{2} \frac{K(k)}{K(k')} \frac{K(k'_0)}{K(k_0)} \quad (\text{Eq. 49})$$

Dès lors, si l'on veut prédire l'influence du matériau magnéto-diélectrique en changeant sa permittivité ( $\epsilon_r^{STO}$ ), on calcule  $\epsilon_{eff}$  de la manière suivante : la constante diélectrique de chaque couche étant supposée connue, on ajuste à partir des mesures les facteurs de remplissage pour la CPW à vide, puis pour la CPW chargée :

$$\epsilon_{eff}^{Vide} = 1 + (\epsilon_r^{Si} - \epsilon_r^{air})q_1 + (\epsilon_r^{SiO_2} - \epsilon_r^{Si})q_2 \quad (\text{Eq. 50})$$

$$\epsilon_{eff}^{Chargé} = 1 + (\epsilon_r^{Si} - \epsilon_r^{air})q_1 + (\epsilon_r^{SiO_2} - \epsilon_r^{req})q_2 + (\epsilon_r^{STO} - \epsilon_r^{SiO_2})q_3 \quad (\text{Eq. 51})$$

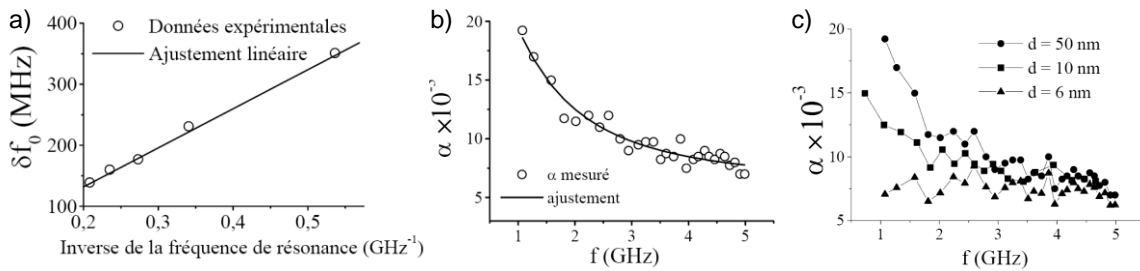
Il ne reste plus qu'à changer la valeur de  $\epsilon_r^{STO}$ , ce qui détermine la nouvelle valeur de  $\epsilon_{eff}^{Chargé}$ , ce qui permet de prédire la réponse de la ligne CPW.

### 3.5) Ondes de spin et augmentation de l'amortissement

On s'intéresse ici à des artefacts souvent constatés lorsque l'on reporte un échantillon sur une ligne coplanaire afin d'en extraire la perméabilité. En effet, des travaux rapportent que la largeur du ruban central peut provoquer des effets non désirés sur les mesures, tel qu'un décalage de la fréquence  $\delta f_r$  ou une augmentation de la largeur de raie  $\delta \Delta f$  [12,13]. Council et. al ont proposé l'explication que ce phénomène serait dû à l'excitation non homogène du film magnétique par le champ RF, ce qui aurait pour conséquence de propager des ondes de spin. Ils supposent que les seules ondes de spin excitées sont celles générées par le ruban central W, avec un vecteur d'onde  $k_{max} = \pi/W$ . Une formule, basée sur le calcul de perméabilité tenant compte d'onde de spin, a été proposée [13,14] pour modéliser ces effets d'augmentation de fréquence ou de l'amortissement :

$$\delta f_r \cong \frac{\gamma_0^2 M_s^2 k_{max} e_F}{2 f_r} \quad \text{et} \quad \delta \Delta f = C \left( \frac{k_{max} e_F}{f_r} \right)^2 \quad (\text{Eq. 52 et 53})$$

On rappelle que  $e_F$  est l'épaisseur du film magnétique,  $f_r$  sa fréquence de résonance ferromagnétique et  $C$  une constante qui dépend de la largeur de raie intrinsèque et de l'aimantation. Ces dépendances en fonction de l'épaisseur et de la fréquence de résonance ont bien été vérifiées expérimentalement [14], comme montré figure 8, bien que d'autres effets soient mis en jeu également.



**Figure 8 : Ajustements de (a) la fréquence de résonance en fonction de l'inverse de la fréquence de résonance intrinsèque, (b) l'amortissement en fonction de la fréquence de résonance et (c) de l'épaisseur. D'après Council et .al [14].**

### 3.6) CPW intégrées et champs démagnétisants

Ici, nous traitons de la particularité des lignes coplanaires intégrées [8], c'est-à-dire que le film magnétique est déposé et usiné sur la ligne de signal ; elles ont donc un usage unique. En effet, de par les dimensions réduites mises en jeu, les effets démagnétisants sont exacerbés et la fréquence de résonance ferromagnétique est fortement décalée vers les hautes fréquences, d'autant plus que le ruban central est fin. A titre d'exemple, sur nos échantillons possédant une fréquence de résonance naturelle à 5 GHz, on observe un décalage de cette fréquence à 15 GHz avec une ligne dont le ruban central a pour largeur  $W = 5 \mu\text{m}$ . Ce décalage est pris en compte dans les simulations électromagnétiques et peut être évalué en calculant les champs démagnétisants à l'aide des formules d'Aahroni [15], comme montré figure 9.a. On remarquera que dans ce cas aussi la largeur de raie à mi hauteur est impactée par la largeur de la ligne de signal (figure 9.b). On note qu'à ces dimensions ( $< 50\mu\text{m}$ ), les imprécisions technologiques auront des conséquences sur la fréquence de résonance.

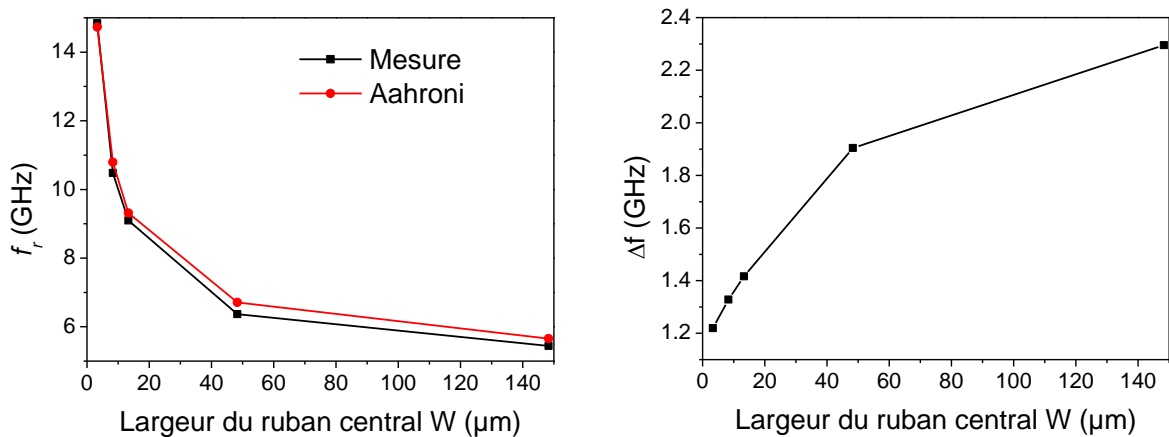


Figure 9 : Evolution en fonction de la largeur de ruban central de la CPW de : (a) la fréquence de résonance mesurée et calculée théoriquement par les équations de Aahroni, (b) la largeur de raie à mi-hauteur.

## IV) Post traitements numériques

Nous allons nous intéresser dans cette partie au post traitement des mesures, étape souvent indispensable pour remonter aux informations sur la physique des matériaux étudiés. Nous présentons ici le cas de mesures avec un champ magnétique statique  $H_0$  appliqué suivant l'axe facile, et un champ d'excitation RF suivant l'axe difficile. D'autres configurations sont possibles, et ne demandent que de petits changements des expressions citées par la suite, en appliquant la théorie développée chapitre I. Nous donnerons ici des exemples de mesures réalisées avec un échantillon de permalloy Py ( $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ) avec comme paramètres d'entrée :  $e_F = 110 \text{ nm}$ ,  $M_s = 9900 \text{ Oe}$  et  $H_k = 4 \text{ Oe}$  déterminés au préalable (mesures statiques).

#### **4.1) Fonction d'ajustement préalable à la mesure de perméabilité**

La première étape consiste à ajuster une fonction mathématique sur les données de la mesure afin d'en extraire la fréquence de résonance et la largeur de raie à mi-hauteur. Pour cela, nous utilisons la forme d'une fonction de Lorentz complexe en générale bien adaptée à la description de la perméabilité, comme présenté chapitre I.1.1.4. Cependant, des artefacts de mesures peuvent apparaître : un décalage du niveau de référence sur la partie imaginaire (*OffIm*) et réelle (*OffRe*), ainsi qu'un décalage de phase  $\phi$  entre la partie imaginaire et la partie réelle (généralement due à de petites erreurs de calibration ou d'estimation des longueurs). On peut alors réécrire l'expression Lorentzienne avec des moyens d'ajustement sur la mesure comme suit :

$$\mu(f) = 1 + \text{OffRe} + i \cdot \text{OffIm} + \frac{A}{f_r^2 - f^2 + i f \Delta f} e^{i\phi} \quad (\text{Eq. 54})$$

On précise que  $f_r$ ,  $\Delta f$ ,  $\phi$ , *OffIm* et *OffRe* qui sont les paramètres libres de l'ajustement. L'ajustement est réalisé simultanément sur la partie réelle et la partie imaginaire de la mesure à l'aide du logiciel Origine.

#### **4.2) Application à la monospire et aux lignes CPW**

A présent, nous analysons les deux techniques de mesure, monospire et en guide d'onde coplanaire, dont la perméabilité a été extraite à partir des méthodes citées ci dessus. Les deux mesures ont été réalisées sur le même échantillon de Py, de dimension 4x4 mm<sup>2</sup>. La CPW utilisée a pour caractéristiques  $L = 6$  mm ( $f_{\lambda/2} \approx 10$  GHz),  $W = 50$   $\mu\text{m}$  et  $G = 28$   $\mu\text{m}$ . Les mesures brutes et après ajustement sont présentés figure 10.

On constate que l'ajustement pour la monospire est le meilleur, ce qui est certainement dû, d'une part, à une meilleure homogénéité de l'excitation RF, et d'autre part, au fait que tous les paramètres ne sont pas pris en compte dans la méthode CPW, notamment pour les calculs du model et certains phénomènes physiques. Ainsi, on confirme qu'en mesure de lignes coplanaires, la fréquence de résonance et la largeur de raie sont significativement augmentées. Toutefois, les formules proposées par Counil et. al pour corriger ces augmentations ne suffisent pas à compenser pleinement ces effets, ce qui laisse supposer que d'autres contributions existent.

C'est pourquoi la mesure en monospire sera préférée par la suite, dans la limite de résolution de cette méthode, c'est-à-dire la sensibilité à l'épaisseur (la méthode « CPW » est plus sensible), de l'ordre de 5 nm pour une couche de Py par exemple. On peut ainsi extraire les paramètres intrinsèques à l'échantillon et s'affranchir de phénomènes purement expérimentaux.

En revanche, les lignes CPW, notamment en technologie intégrée, permettent de caractériser des objets extrêmement petits, comme des réseaux de plots, de faire des mesures à haute fréquence. De plus, elles sont immédiatement plus proches de véritables dispositifs, comme des objets résonants, filtrants, inductifs... C'est pourquoi leur étude reste nécessaire



afin de comprendre et de connaître les effets qu'elles peuvent générer sur la réponse magnétique (et réciproquement), en vue des applications à venir.

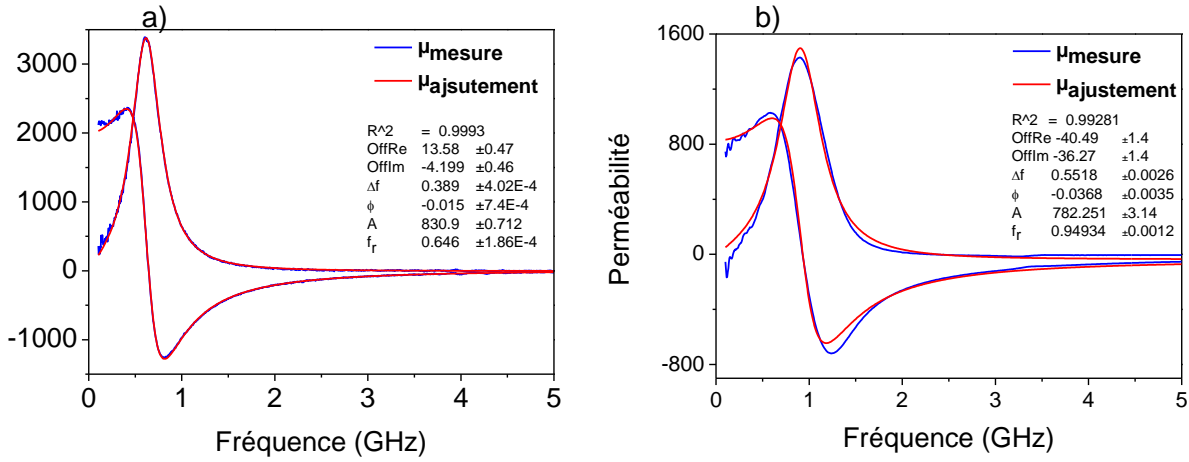


Figure 10 : Mesures et ajustement de perméabilité de Py en méthode a) Monospire, b) CPW.

### 4.3) Extraction de paramètres

Comme montré chapitre I, nous pouvons maintenant relier  $f_r$  et  $\Delta f$  à des grandeurs physiques magnétiques grâce au post traitement précédent :

$$\Delta f = \alpha (2H_{eff} + M_s) \quad (\text{Eq. 55})$$

$$f_r = \frac{\gamma_0}{2\pi} \sqrt{(H_{eff} + M_s)H_{eff}} \approx \frac{\gamma_0}{2\pi} \sqrt{M_s H_{eff}} \quad (\text{Eq. 56})$$

On rappelle que  $H_{eff} = H_0 + H_k + \dots$  soit toutes contributions magnétiques internes à l'échantillon.

Une des solutions les plus riches d'information, en général, est d'observer le comportement de la fréquence de résonance au carré en fonction du champ statique appliqué ( $f_r^2$  vs  $H_0$ ). En effet, cette dépendance est linéaire au premier ordre ( $M_s \gg H_{eff}$ ). On peut alors en extraire, à partir d'un ajustement linéaire, le champ effectif  $H_{eff}$ , qui est l'intersection de la droite avec l'axe des champs, et l'aimantation à saturation  $M_s$  ou le facteur gyromagnétique  $\gamma_0$  qui sont proportionnels à la pente de la droite. Ceci est illustré figure 11.c.

On peut aussi observer le comportement de l'amortissement en fonction du champ statique appliqué. Cela permet de mettre en avant, par exemple, le fait qu'il ne soit pas constant, et qu'il diminue largement avec le champ appliqué grâce à la réduction des inhomogénéités magnétiques résiduelles de l'échantillon (figure 11.d).

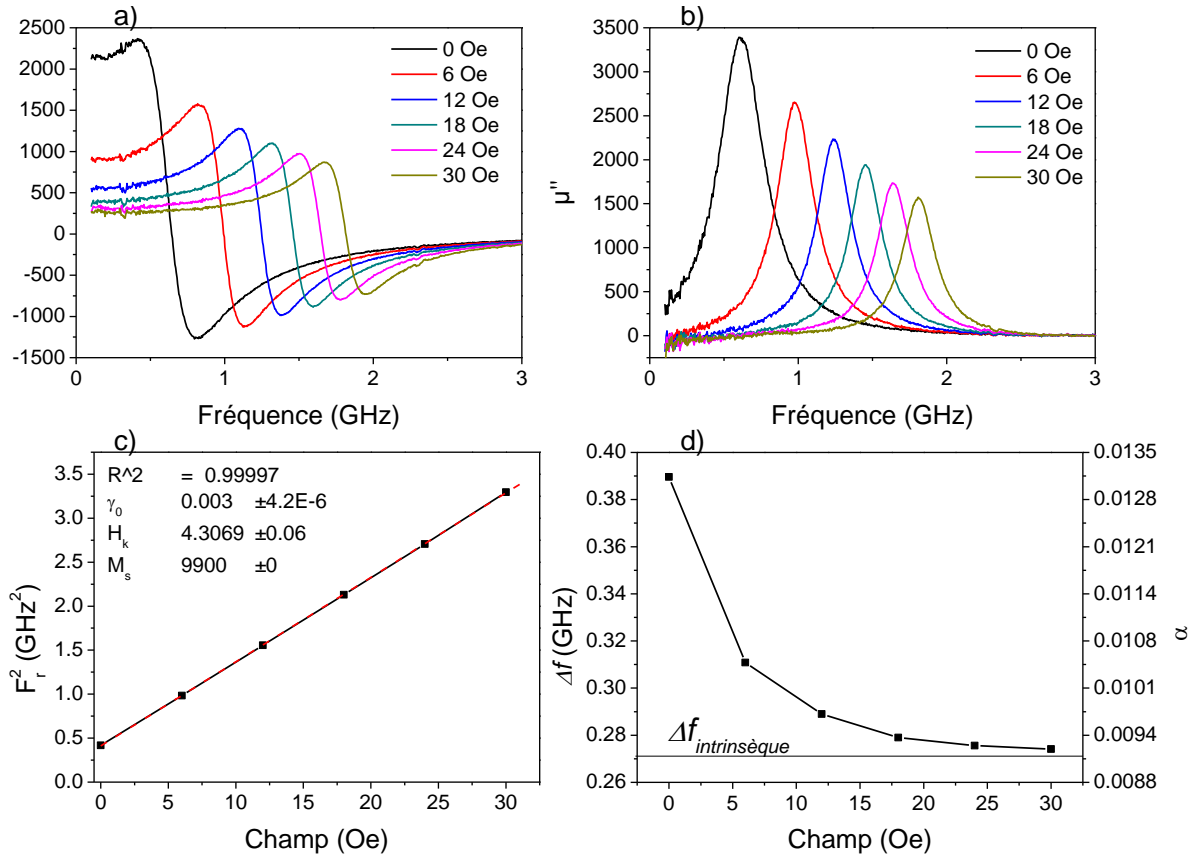


Figure 11 : a,b) Mesures monopire de la perméabilité d'un échantillon de Py en fonction du champ appliqué et exemple d'extraction des paramètres : c) fréquence de résonance au carré pour extraire  $\gamma_0$  et  $H_k$ , d) évolution de l'amortissement et mise en évidence des inhomogénéités magnétiques y contribuant.

#### 4.4) FMR de systèmes couplés AF

Dans le cas de matériaux à couplage antiferromagnétique, il est également très instructif de faire des mesures  $f_r^2$  vs  $H_0$  en cycle hystérique ( $H_{max} \rightarrow -H_{max} \rightarrow H_{max}$ ). Comme montré figure 12.a, le cycle est asymétrique (cf. I.3.3), il faut donc retirer ces points pour effectuer l'ajustement dont la fonction s'écrit :

$$f_r^2 = \left( \frac{\gamma_0}{2\pi} \right)^2 M_s \left( H_k^{eff} + |H_0 + H_{ex,dyn}| \right) \left( H_k^{eff} + |H_0 + H_{ex,dyn}| \right) \quad (\text{Eq. 57})$$

La valeur absolue permet de prendre en compte la valeur positive et négative du champ statique et le caractère unidirectionnel du champ d'échange. Les paramètres libres sont  $M_s$  ou  $\gamma_0$ ,  $H_{ex,dyn}$  et  $H_k^{eff}$ .  $H_k^{eff}$  représente le champ d'anisotropie effectif comprenant notamment le champ d'anisotropie uniaxial  $H_{k,int}$  intrinsèque à la couche ferromagnétique et le champ d'anisotropie rotatoire  $H_{k,rot}$ . On les définit comme :

$$H_{k,rot} = H_{ex,stat} - H_{ex,dyn} \quad (\text{Eq. 58})$$

$$H_{k,int} = H_k^{eff} - H_{k,rot} \quad (\text{Eq. 59})$$

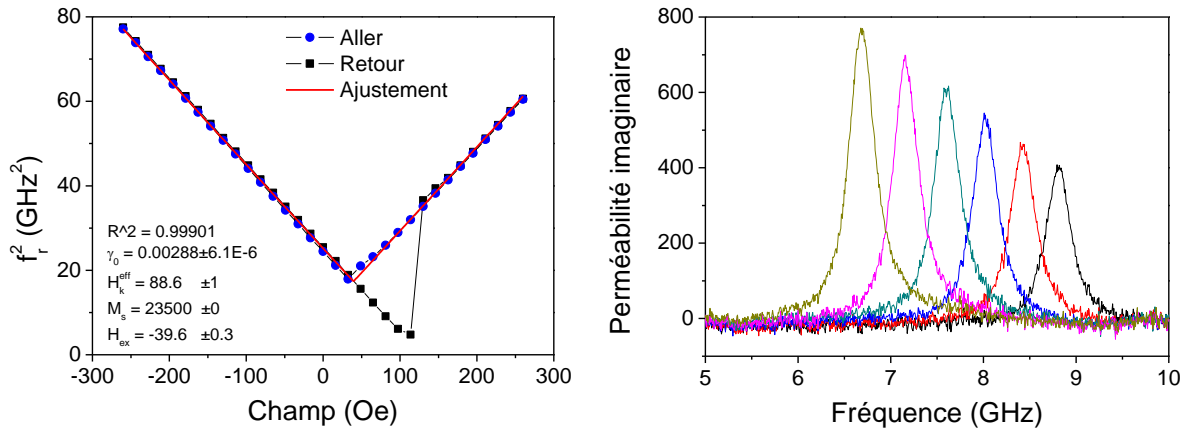


Figure 12 : a) ajustement de  $f_r^2$  vs.  $H_0$  d'une bicouche F/AF, b) Exemple de mesure monopire au-delà de la fréquence de résonance de la même bicouche F/AF.

#### 4.5) Monospire : au-delà de $f_c$

On montre figure 12.b qu'il est bien possible d'extraire la perméabilité au-delà de la fréquence de résonance de la monopire (ici  $f_c \approx 7$  GHz). Il n'est pas nécessaire d'appliquer de corrections supplémentaires à celles précisées auparavant pour la mesure monopire, seulement être très méticuleux lors de la mesure (ne pas déplacer l'échantillon ou les bobines de Helmholtz, ne pas faire bouger les câbles RF...).

### V) Caractérisation des diélectriques

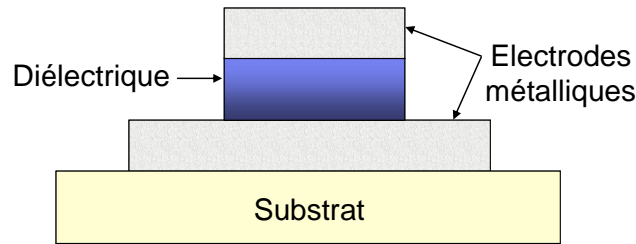
#### 5.1) Capacité MIM et applications

La capacité MIM – Métal-Isolant-Métal – est un condensateur plan constitué d'une couche isolante prise en sandwich entre deux électrodes métalliques, comme montré figure 13. Sous l'application d'une différence de potentiel  $V$  entre les deux armatures du condensateur, ce dernier se charge ; il apparaît une charge  $Q = CV$  avec  $C$  capacité du condensateur. Elles sont très utiles pour caractériser la constante diélectrique d'isolants à basse fréquence et sont extrêmement faciles à réaliser (un seul niveau de gravure).

On peut écrire la capacité du condensateur plan sous la forme suivante :

$$C = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{S}{e_d} \quad (\text{Eq. 60})$$

avec  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide ( $1/(36\pi) \cdot 10^{-9}$  F.m-1),  $\varepsilon_r$  la permittivité relative du matériau,  $S$  la surface de l'électrode et  $e_d$  l'épaisseur du matériau.



*Figure 13 : Schéma d'une capacité MIM.*

Il existe différentes applications de la capacité MIM, qui ne requièrent pas toutes les mêmes spécificités. Les principaux critères à prendre en compte sont la valeur de la capacité, sa stabilité vis-à-vis de la tension appliquée et ses pertes. On peut citer par exemple :

- les capacités de découplage : il peut exister un couplage électrique entre les lignes électriques RF dans les différents niveaux intermétalliques. Il est donc nécessaire de placer des capacités de grande valeur (2-1000 nF) entre l'alimentation et la masse pour limiter de couplage. Elles ne nécessitent pas une grande linéarité en tension.
- les capacités analogiques : ce sont des capacités de faible valeur (1-100 pF) qui nécessitent une grande linéarité en tension.
- les capacités de liaison : elles permettent l'isolation d'une tension continue et requièrent une capacité entre de 1 à 10 nF.
- les DRAM (Dynamic Random Access Memory) : les mémoires DRAM sont basées sur le stockage d'une charge dans le diélectrique. L'amélioration de leurs propriétés capacitives est nécessaire pour poursuivre la miniaturisation de ces mémoires.

L'intérêt technologique des capacités MIM réside dans le fait que les électrodes métalliques présentent une résistivité très inférieure à celle du silicium, ce qui permet la diminution des résistances d'accès. De plus, la capacité est empilable : elle peut se trouver au-dessus des composants actifs, deux capacités MIM peuvent être réalisées à deux niveaux de métal différents et être associées en parallèle. Ce type d'architecture permet un gain de place important. Enfin, sa position permet de diminuer les capacités parasites par rapport au substrat.

En revanche, une des contraintes majeures de la capacité MIM est une contrainte d'intégration. L'élaboration de la capacité arrive en fin de procédé CMOS, le budget thermique lui étant alloué est limité afin d'éviter la dégradation des composants et interconnexions des niveaux précédents. Les températures d'élaboration (dépôt et recuit) ne doivent donc pas dépasser 400°C. Or la plus part des diélectriques à forte permittivité cristallisent à plus de 500°C. D'où un intérêt à la possibilité de cristalliser à plus basse température des diélectriques à forte constante, dont le STO et le BST.

## 5.2) Dépendances en tension

Lorsqu'une tension est appliquée sur la capacité MIM, on observe une variation de la capacité. Cette non linéarité en tension suit généralement une loi polynomiale du second degré :

$$C(V) = C_0 (C_2 V^2 + C_1 V + 1) \quad (\text{Eq. 61})$$

où  $C_0$  est la capacité à 0 V,  $C_2$  et  $C_1$  sont les coefficients quadratiques (en ppm/V<sup>2</sup>) et linéaires (en ppm/V). Leur amplitude dépendra du matériau caractérisé. La courbure de la réponse  $C(V)$  peut être positive ou négative suivant le type de matériau, et dans le cas des ferroélectriques, on observera également un phénomène d'hystérésis sur cette courbe. Cette variation de capacité est due à la dépendance de la permittivité avec son champ local pour la partie quadratique et à l'accumulation de charges aux interfaces pour la partie linéaire. On verra plus loin que ceci peut affecter les valeurs annoncées de permittivité.

De plus, des courants de fuite apparaissent lors de l'application d'une tension aux bornes du condensateur. Ces courants de fuite sont causés par différents types de défauts liés au diélectrique lui-même ou à la structure du composant réalisé. On peut différencier différents types de pertes par courants de fuites liées aux phénomènes de conduction suivants :

- l'émission thermoélectronique ou effet Schottky : des porteurs de charge sont injectés depuis l'électrode métallique dans le diélectrique en passant au-dessus de la barrière de potentiel résultant de l'interface métal/diélectrique.
- l'effet Fowler-Nordheim : il s'agit en fait d'un effet tunnel qui autorise une particule (ici l'électron) à franchir une barrière de potentiel, franchissement impossible selon la mécanique classique. Dans le cas d'une capacité, un porteur peut être transféré d'une électrode à une autre à travers l'oxyde en l'absence de champ si le diélectrique est suffisamment mince. Pour des diélectriques plus épais, l'effet tunnel n'est observable que si un fort champ électrique est appliqué. Ce champ aura pour effet de modifier la forme de la barrière de potentiel permettant ainsi l'effet tunnel. On parle alors de mécanisme de transport de type Fowler-Nordheim.
- l'effet Poole-Frenkel : ce mécanisme de conduction est assisté par la présence de défauts (pièges) dans le diélectrique. Les électrons se propagent par sauts entre des états localisés dans la bande interdite du diélectrique qui sont censés être des centres ionisés (donneurs d'électrons). Cet effet résulte de l'abaissement de l'énergie d'ionisation de ces centres avec l'application d'un champ électrique.
- la limitation par charges d'espace : elle intervient lorsque le taux d'injection des porteurs à l'interface métal/diélectrique est supérieur au taux maximum de transfert de ces charges dans le diélectrique. Il y a alors création d'une zone de charge d'espace qui s'oppose à l'injection de nouveaux porteurs.

Ces effets sont observables en mesures  $I(V)$  (on parle aussi de mesures  $J(E)$ , avec  $J$  la densité de courant). Suivant la dépendance de la courbe, on reconnaîtra le comportement :

- Schottky ou Poole-Frenkel si le graphe liant  $\ln J$  à  $E^{1/2}$  est une droite ou si le graphe liant  $\ln J$  à  $1/T$  à un champ donné est une droite

- Fowler-Nordheim si le graphe liant  $\ln(J/E^2)$  à  $1/E$  est une droite; c'est le seul mécanisme sur lequel la température a un effet négligeable
- Limitation de charge d'espace si le graphe liant  $J$  à  $E^2$  est une droite

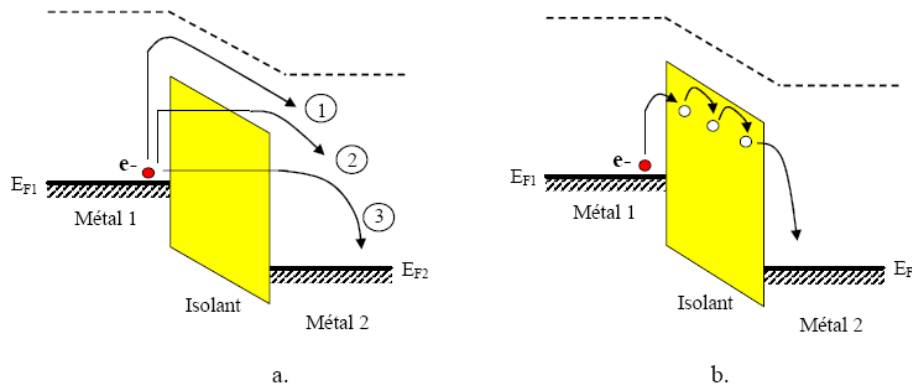


Figure 13 : Diagramme de bandes d'énergie pour une capacité MIM polarisée dans le cas de conduction de type (a,1) Schottky, (a,2) Fowler-Nordheim, (a,3) tunnel direct ou (b) Poole-Frenkel.

Lorsque la tension appliquée aux bornes d'un isolant dépasse un certain seuil, le matériau s'ionise et devient conducteur. Ce phénomène dégrade de façon irréversible les propriétés physiques et électriques du diélectrique et doit être par conséquent évité dans les capacités. McPherson *et al.* ont montré que le champ de claquage  $E_{BD}$  diminue lorsque la constante diélectrique augmente selon la relation suivante [16] :

$$E_{BD} = 29,9 \cdot \epsilon_r^{-0,65}$$

Les paramètres 29,9 et 0,65 ont été extraits à partir d'un ajustement de la constante diélectrique en fonction de la tension de claquage pour différents diélectriques (solides) [16]. En réalité, la fonction est plus complexe, et fait intervenir différents paramètres qui ne sont pas aisés à obtenir.

### 5.3) Méthodes de mesure de la permittivité

Pour la mesure quasi-statique, nous disposons d'un impédance-mètre. C'est un appareil qui injecte une tension alternative (en générale entre 1kHz et 1MHz) et mesure l'impédance caractéristique de l'onde. Il est relié à la capacité MIM par deux pointes DC (ou 4 si on veut supprimer les résistances de contact), une sur le plan métallique inférieur, une sur le plan métallique supérieur. On peut aussi opérer une calibration du système en Short-Open (Court Circuit, Circuit Ouvert) et charge adaptée (cette dernière n'est pas nécessaire, mais on a observé une réduction du bruit de mesure).

Ces appareils peuvent donner, en général, la valeur de la capacité mesurée et de la tangente de perte, ou bien encore de la conductance. On préférera extraire directement l'impédance caractéristique de l'onde et sa phase, et à partir de modèles électriques en déduire les valeurs souhaitées. Dans notre cas, c'est le modèle d'une capacité en parallèle avec une résistance (valide en basse fréquence) qui sera utilisé. Un simple calcul de l'impédance du

circuit peut alors nous permettre d'identifier les paramètres. On pourrait rajouter à ce modèle des résistances en série à l'entrée et la sortie du circuit, afin de modéliser les résistances d'accès, mais une calibration du court circuit sur l'électrode inférieure remplit cet office.

### a) Effets de bord

En pratique, nous mesurons un jeu de capacité de surface  $S = 1 \times 1 \text{ mm}^2$ ,  $500 \times 500 \mu\text{m}^2$ ,  $300 \times 300 \mu\text{m}^2$  et  $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ . Comme pour le magnétisme, des effets de bords apparaissent, et modifient la valeur de la constante diélectrique (ou de la capacité) mesurée. On voit bien dans l'exemple de la figure 16.b que la constante diélectrique extraite à partir de la valeur de la capacité est dépendante de la surface. Une solution pour extraire la permittivité intrinsèque est de tracer la capacité en fonction de la surface. Cette dépendance est linéaire, et la pente est proportionnelle à la permittivité intrinsèque, comme nous le montrons figure 14.a.

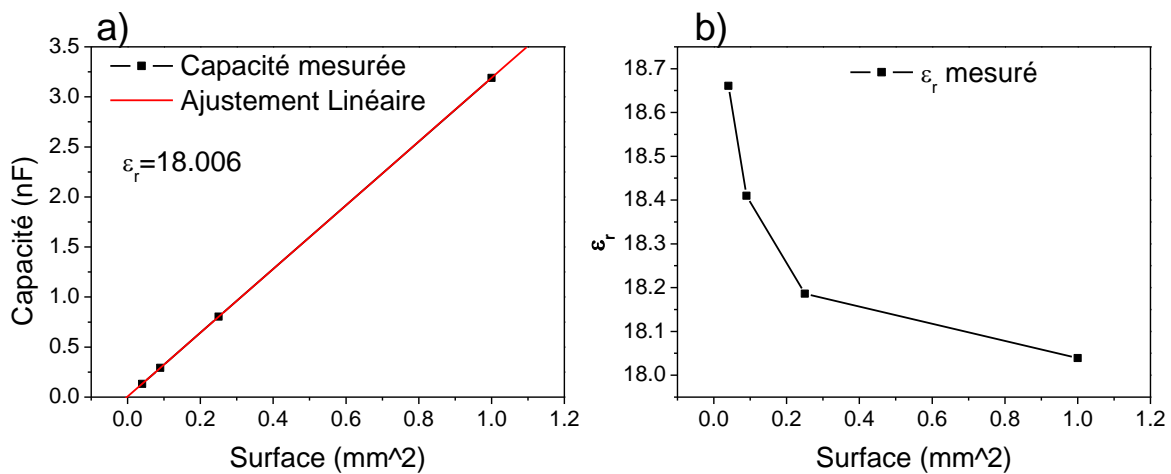


Figure 14 : a) Exemple d'une mesure de capacité Pt/STO/Pt en fonction de la surface et extrapolation de la constante diélectrique à partir de la pente, b) Même mesure avec la constante diélectrique extraite à partir de la capacité en fonction de la surface.

### b) Dépendance fréquentielle

Il existe une dépendance de la constante diélectrique mesurée avec la fréquence du à des relaxations associées à des mouvements de charge interfaciaux (figure 15). Cette dépendance est complexe, voire impossible à modéliser. En effet, elle dépend du matériau étudié, de la nature des électrodes... Différents modèles empiriques ont été développés [17, 18, 19], et dans notre cas, une fonction Cole-Cole [19] ajuste bien nos mesures.

$$\epsilon = \epsilon_{\infty} + \frac{\epsilon_{statique} - \epsilon_{\infty}}{1 + (it_0 2\pi f)^{\alpha}} \quad (\text{Eq. 62})$$

avec  $\epsilon_{statique}$  la permittivité statique,  $\alpha$  la largeur de distribution du temps de relaxation et  $\epsilon_{\infty}$  la permittivité à l'infini, que nous considérerons comme la valeur de permittivité extrapolée aux hyperfréquences. Bien entendu, les valeurs obtenues par cette méthode ne sont

qu'indicatives ; l'idéal consisterait à faire des mesures hyperfréquences comme par exemple les mesures de résonance LC de capacité MIM [20]. Mais nous obtenons ainsi une bonne estimation de la valeur de la constante diélectrique, qui dans l'exemple de la figure 15 concorde bien avec des mesures hyperfréquences réalisée sur le même matériau [20, 21].

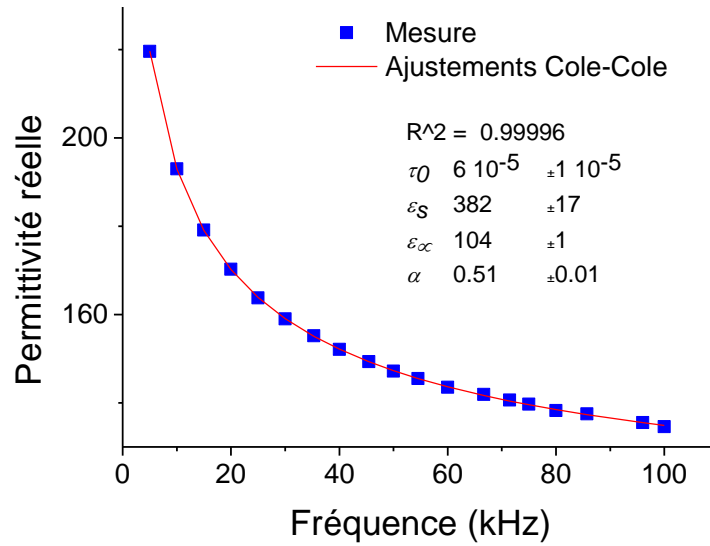


Figure 15 : Dépendance fréquentielle de la permittivité d'une capacité MIM Pt/STO/Pt pour un ajustement de type Cole-Cole.



## Références

- [1] E. Bènevent, K. Garello, B. Viala, “*High Permeability and High Permittivity Heterostructures for the Miniaturization of RF Components*”, IJMWT (10/2009)
- [2] D. Pozar, « *Microwave Engineering* », Troisième Edition, Wiley (2005)
- [3] Scott A. Wartenberg, “*RF Measurement of Die and Packages*”, Artech House, Boston, (2002)
- [4] Luuk F. Tiemeijer, Ramon J. Havens, “*A calibrated Lumped-element de-embedding technique for on wafer RF characterization of high-quality inductors and high-speed transistors*”, IEEE Trans. on Electron Devices, Vol. 50, p. 822 (2003)
- [5] V. Bekker, K. Seemann, H. Leiste, “*A new strip line broad-band measurement evaluation for determining the complex permeability of thin ferromagnetic films*”, J. Mag. Mag. Mat., Vol. 270, p. 327–332 (2004)
- [6] C.P. Wen, “*Coplanar Waveguide: A Surface Strip Transmission Line Suitable for Non-Reciprocal Gyromagnetic Device Application*”, IEEE Trans. on Microwave Theory and Techniques, Vol. 17, p.1087 (1969)
- [7] W. Heinrich, “*Quasi-TEM description of MMIC coplanar lines including conductor-loss effects*”, IEEE Trans. Microwave Theory Tech., Vol. 41, p. 45-52 (1993)
- [8] Jean-Philippe Michel, « *Lignes coplanaires ferromagnétiques sur silicium pour applications microondes* », Diplôme de Recherche Technologiques, Université Joseph Fourier de Grenoble (2006)
- [9] W. Barry, “*A broad band, automated, stripline technique for simultaneous measurement of complex permittivity and permeability*”, IEEE Trans. Microwave Theory Tech., Vol. 34, p. 80-84 (1986)
- [10] C. Bilzer, T. Devolder, P. Crozat, and C. Chappert, S. Cardoso and P. P. Freitas, “*Vector network analyzer ferromagnetic resonance of thin films on coplanar waveguides: Comparison of different evaluation methods*”, J. Appl. Phys., Vol. 101, p. 074505 (2007)
- [11] Mossaab Ouaddari, Sébastien Delprat, François Vidal, Mohamed Chaker, and Ke Wu, “*Microwave Characterization of Ferroelectric Thin-Film Materials*”, IEEE Trans. on Microwave Theory and Techniques, Vol. 53, p. 1390 (2005)
- [12] M. L. Schneider, A. B. Kos, and T. J. Silva, “*Finite coplanar waveguide width effects in pulsed inductive microwave magnetometry*”, Appl. Phys. Lett., Vol. 85, p; 254 (2004)
- [13] G. Counil, Joo-Von Kim, T. Devolder, and C. Chappert, K. Shigeto and Y. Otani, “*Spin wave contributions to the high-frequency magnetic response of thin films obtained with inductive methods*”, J. Appl. Phys., Vol. 95, No. 10 (2004)
- [14] Counil Guillaume. “*Perméamétrie hyperfréquence de couches minces magnétiques*”, PhD thesis, Université Paris XI ORSAY (2005)
- [15] A. Aharoni, “*Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms*”, J. Appl. Phys., Vol. 83, p. 3432-3434 (1998)
- [16] J. McPherson, J.Y. Kim, A. Shanware, H. Mogul, “*Thermochemical description of dielectric breakdown in high dielectric constant materials*”, Applied Physics Letters, vol 82, p. 2121-2123 (2003)

- [17] S. Havriliak and S. Negami., “*A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers*”, *Polymer*, Vol. 8, p. 161 (1967)
- [18] A. K. Jonscher, “*Dielectric relaxation in solids*”, *J. Phys. D Appl. Phys.*, Vol. 32 (1999)
- [19] K. S. Cole and R. H. Cole, “*Dispersion and Absorption in dielectrics*”, *J. Chem. Phys.*, Vol.9, p. 341-351 (1941)
- [20] E. Defaÿ, F. Blanchet, C. Billard, C. Fort, J.B. David, L. Lombard and L. Galera, “*Integrated MIM perovskite capacitors for RF applications*”, *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 66, p. 231-242 (2004)
- [21] T. Lacrovez, B. Fléchet, A. Farcy, J. Torres, M. Gros-Jean, C. Bermond, T.T. Vo, O. Cueto, B. Blampey, G. Angénieux, J. Piquet and F. de Crécy, “*Wide band frequency and in situ characterisation of high permittivity insulators (High-K) for H.F. integrated passives*”, *Microelectronic Engineering*, Vol. 83, p. 2184-2188 (2006)

# **Chapitre III : Caractéristiques de l'hétérostructure magnéto-diélectrique**

<b>I) Introduction</b>	<b>98</b>
<b>II) Electrodes magnétiques</b>	<b>99</b>
2.1) La technique de dépôt par pulvérisation cathodique (PVD)	99
2.2) $Fe_{65}Co_{35}$	100
2.3) $Ni_{50}Mn_{50}$	102
2.4) Empilement référence F/AF	103
2.5) Electrode magnétique finale F/AF/F	106
2.6) Conclusion électrodes magnétiques	109
<b>III) Matériaux diélectriques</b>	<b>109</b>
3.1) Généralité sur $SrTiO_3$ en couches minces	109
3.2) La capacité MIM	110
3.3) Méthodes de dépôt et cristallisation	111
a) PVD	111
b) Dépôt par faisceau d'ion (IBS)	112
c) Cristallisation à basse température	113
3.4) Electrodes (Pt, Ru) et analyse structurale	113
a) Electrodes Pt	114
b) Electrodes Ru	116
3.5) Dépendance en température de la cristallisation de STO	117
<b>IV) Matériau magnéto-diélectrique</b>	<b>119</b>
4.1) Structure « Tout PVD »	119
4.2) Structure « Mixte » PVD-IBS	120
a) Mesures XRD	120
b) Observations TEM	121
c) Mesures de permittivité	122
d) Influence de la cristallisation de STO sur l'électrode magnétique	124
e) Multi-alternances [F/AF/F/D]*n	125
<b>V) Conclusion</b>	<b>126</b>
<b>Références</b>	<b>127</b>

## I) Introduction

Nous allons détailler dans cette partie l'hétérostructure magnéto-diélectrique à forte perméabilité et forte permittivité. Comme nous allons le voir, la combinaison de ces deux propriétés n'est pas directe. En effet, la phase à haute permittivité requiert une température de mise en ordre au moins supérieure à 550°C et, de préférence, l'utilisation de recuits sous oxygène afin de combler les lacunes diélectriques (responsable de pertes en dynamique). D'un autre côté, ceci se ferait au détriment des propriétés magnétiques, aussi bien au niveau du couplage d'échange que de la perméabilité qui serait fortement dégradée. En effet, on doit, éviter de recuire les couches minces magnétiques douces, le plus souvent amorphes ou nanocristallines, au dessus de 300°C afin d'empêcher le début de cristallisation des grains ferromagnétiques qui augmentent significativement le champ coercitif et font disparaître les propriétés dites douces du matériau. De plus, l'oxygène est en général à proscrire avec les matériaux magnétiques qui sont essentiellement métalliques, et dont les propriétés sont fortement dégradées une fois oxydés.

Un premier verrou à cette problématique a été levé au cours de la thèse de Julie Guillan [1]. Elle a développé une méthode de dépôt par faisceau d'ions (IBS – Ion Beam Sputtering) qui permet de cristalliser la pérovskite SrTiO<sub>3</sub> en couches minces à basse température (< 400°C) dans des conditions bien précises, ce dernier passant d'une permittivité de 18 à une permittivité de 100, ce qui est considéré comme une haute permittivité. Ce travail a permis par la suite le développement de capacités MIM (métal-isolant-métal) en SrTiO<sub>3</sub> pour les applications CMOS.

Par ailleurs, un second verrou saute au cours de la thèse de Yann Lamy. Il a développé, par dépôt en pulvérisation cathodique (PVD), des matériaux magnétiques couplés antiferromagnétiquement à très haute perméabilité et à très haute fréquence de résonance ferromagnétique ( $f_r = 5$  GHz,  $\mu_{dc} = 180$ ) [2]. Ces matériaux ont la particularité d'être fabriqués avec des températures de l'ordre de 300°C, ce qui est anormalement élevé pour les matériaux doux alors connus de l'état de l'art (CoZrNb [3], FeHfN [4]). Nous reprendrons donc un de ses empilements à base de Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> et de Ni<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>. Il bénéficie de propriétés optimales car le composé ferromagnétique Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> possède la plus forte aimantation connue, donc une perméabilité théorique maximale, et l'alliage antiferromagnétique NiMn possède une des tenues thermiques les meilleures (jusqu'à 350°C) et une constante d'énergie d'échange très élevée.

On le voit, nous avons à notre disposition deux techniques de dépôt, une optimisée pour les dépôts magnétiques, l'autre pour la cristallisation de pérovskites à basse température. L'idéal est alors de réaliser nos matériaux dans un seul bâti de dépôt, idéalement l'IBS, gage d'une bonne qualité d'interface, de non oxydation de nos couches magnétiques, et de propriétés optimum. Par contre, cela nécessite d'y stabiliser les matériaux magnétiques. Voici donc la stratégie de développement originale :

- Dépôt « Tout PVD », pour obtenir des propriétés magnétiques optimums adaptées à notre étude, puis pour tester la compatibilité Magnétique -  $\text{SrTiO}_3$  (non cristallisé) dans l'attente d'un accès IBS total.
- Dépôt « Mixte PVD/IBS », afin de, dans un premier temps, reproduire les résultats de J. Guillan, puis pour tenter des premiers essais de cristallisation du  $\text{SrTiO}_3$  sur des électrodes magnétiques dans l'attente d'un accès IBS total.
- Dépôt « Tout IBS », pour avoir une version finale et stabilisée de notre hétérostructure magnéto-diélectrique. Cela ne sera malheureusement pas possible pour des raisons de partage du bâti IBS.

Le matériau magnéto-diélectrique que nous présenterons sera donc un hybride des deux techniques de dépôt, ce qui implique un transfert de machine et donc une détérioration des interfaces, qui heureusement ne sera pas prédominante pour l'observation des principaux effets désirés, comme nous le verrons par la suite.

## II) *Electrodes magnétiques*

Nous présentons dans cette partie les propriétés magnétiques statiques et dynamiques de ce que nous appellerons les « électrodes magnétiques » utilisées au cours de cette thèse. Ces matériaux ont été développés au cours de la thèse de Yann Lamy [2], mais nous en ferons un usage sensiblement différent. Le but de la thèse consiste à avoir des électrodes magnétiques ayant un maximum de perméabilité, peu de pertes et une fréquence de résonance ferromagnétique la plus élevée possible et ajustable, pour un bilan thermique d'environ  $300^\circ\text{C}$  par souci de compatibilité avec la couche de  $\text{SrTiO}_3$ . Ceci a été réalisé grâce à la combinaison d'une aimantation très élevée et du couplage d'échange antiferromagnétique. L'empilement que nous allons détailler par la suite est une alternance des couches de  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  (F) et de  $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{50}$  (AF) sous la forme F/AF/F qui se révélera au cours de cette thèse être la solution la plus appropriée. Son optimisation permettra de présenter des propriétés magnétiques exceptionnelles dans le domaine hyperfréquence, notamment en termes de pertes.

### 2.1) *La technique de dépôt par pulvérisation cathodique (PVD)*

Les matériaux ferromagnétiques et antiferromagnétiques sont déposés par pulvérisation cathodique magnétron (PVD – Physical Vapor Deposition). Cette technique consiste à ioniser un gaz d'argon et faire collisionner ces ions avec une cible. Les dépôts sont assez rapides (de 0.3 à 1 A/s), et les films obtenus polycristallins, avec des tailles de grains de l'ordre de dix à quelques dizaines de nanomètres. Il existe classiquement deux types d'ionisation, soit avec une source RF (13.56 MHz), nécessaire si l'on utilise des cibles isolantes (pour éviter les accumulations de charges), soit par polarisation DC pour toutes cibles métalliques. Les propriétés de nos matériaux dépendent beaucoup des conditions de dépôt : vide résiduel, puissance et pression de dépôt, nature de la cible (frittée, refondue)... Nous utilisons ici un bâti de dépôt de marque Plassys (MP900), avec six cibles circulaires de 200 mm diamètre (3 RF, 3 DC) et six porte-substrats de diamètre 100 mm adaptés aux substrats de silicium ou de

verre. Ceci offre donc une grande variété de combinaisons de dépôts et de matériaux. Les matériaux magnétiques utilisés étant très sensibles à l'oxygène résiduel, nous considérons qu'un « bon » vide de base sera au maximum de  $9.10^{-8}$  mbar. Tous nos matériaux sont déposés à une pression d'argon relativement faible de  $2.10^{-3}$  mbar, afin de minimiser les défauts structuraux ou d'interface. Le tableau 1 résume les conditions de dépôt pour chacun des matériaux utilisés. Enfin, nous déposons tous nos matériaux sans champ magnétique. Ceci est inhabituel, un champ magnétique durant le dépôt permet en général d'induire une direction privilégiée de l'aimantation. Cependant, grâce au recuit sous champ magnétique et au couplage d'échange, ceci n'est pas nécessaire dans notre cas, et n'a aucune conséquence sur les propriétés de notre empilement final. De plus, le dépôt est ainsi plus homogène en épaisseur.

Matériau	Ionisation	Puissance/Courant	Vitesse dépôt
Fe <sub>65</sub> Co <sub>35</sub>	RF	100 W	0.68 Å/s
Ni <sub>50</sub> Mn <sub>50</sub>	DC	0.12 A	0.88 Å/s
Ru	DC	0.1 A	0.45 Å/s
SrTiO <sub>3</sub>	RF	150 W	0.34 Å/s

Tableau 1 : Résumé des principaux paramètres de dépôt PVD pour nos matériaux

## 2.2) Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub>

Le composé Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> présente un intérêt majeur car il détient la plus forte aimantation connue, d'une valeur théorique de 24 kOe. Or, la perméabilité statique est directement proportionnelle à l'aimantation ; on peut donc s'attendre aux plus grands niveaux de perméabilité avec cet alliage. Il est de structure cubique corps centré (bcc), comme le fer. Il n'est pas doux par nature, et ses propriétés sont extrêmement liées à sa texturation, le plus souvent amorcée par l'intermédiaire d'une sous couche de croissance [5]. Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> est modérément magnétostrictif ( $\lambda_s \sim 50.10^{-6}$ ), et contraint lors du dépôt (compressif, de l'ordre de quelques centaines de MPa). Un recuit relâche ces contraintes substrat. Ceci sera observé pour tous les empilements étudiés, couplés et avec diélectrique. A chaque fois, le dépôt est compressif, et un recuit permet de revenir à contrainte du substrat (tensile en général). Dans notre cas, nous utilisons une sous couche de ruthénium (Ru) de 5 nm, hexagonal et de texture <002>, qui induit une texture <111> dans FeCo. La sous couche de Ru favorise ainsi la réduction du champ coercitif<sup>2</sup>. On dépose également une couche de 5 nm de Ru sur FeCo (« capping »), afin de s'affranchir des problèmes d'oxydation de la couche magnétique, étant donné que Ru est une barrière efficace contre la diffusion d'espèces.

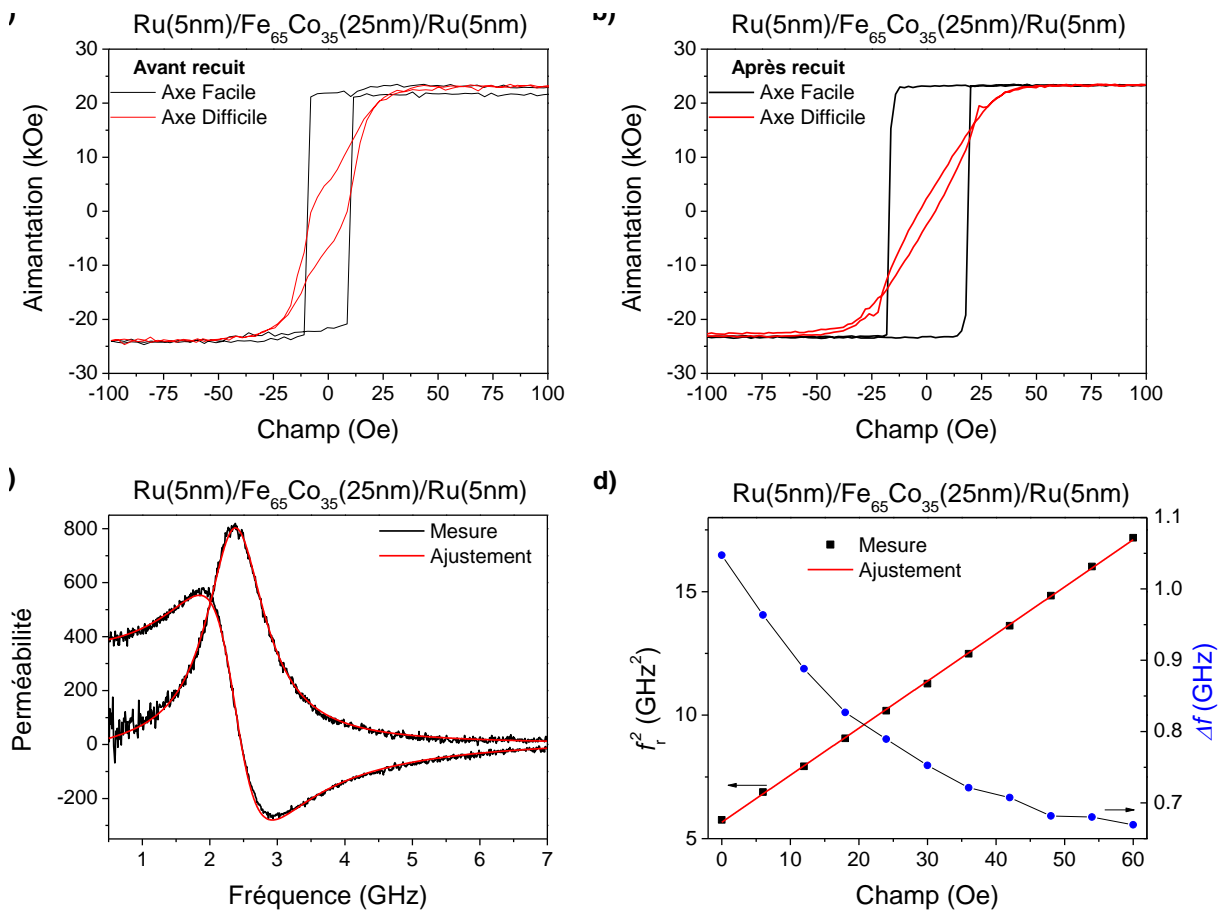
Nous allons dans un premier temps décrire les propriétés statiques de notre Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> :

- Après dépôt, figures 1.a, le champ coercitif  $H_c$  est de 9.5 Oe sur chaque axe (caractère isotrope du FeCo). On note toutefois une tendance de l'aimantation à s'orienter dans une

<sup>2</sup> Pour une structure bcc, une orientation <111> a tendance à minimiser la constante d'anisotropie magnétocristalline  $K_1$ , et donc par conséquent diminuer le champ coercitif  $H_c$  [6].

direction privilégié (courbe axe facile). L'axe difficile reste cependant très ouvert, signe d'un retournement de l'aimantation non parfaitement uniforme qui s'accompagne de la propagation de parois. On vérifie bien que l'aimantation à saturation  $M_s = 23\ 500$  Oe.

- Après recuit (300°C, sous un champ de 500 Oe), figure 1.b, on vérifie que l'augmentation du champ coercitif de FeCo est modérée, soit  $H_c = 17$  Oe. Une conséquence favorable du recuit sous champ est d'induire une direction privilégiée d'aimantation mieux définie (courbe axe facile). Le champ d'anisotropie induit  $H_{k,stat}$ , quantifié à la saturation de l'axe difficile, est de l'ordre de 30 Oe.



**Figure 1 :** Cycle d'hystérésis du FeCo (25nm) avec une sous couche de Ru avant recuit (a), et après recuit (b), c) Spectre de perméabilité du cas recuit et d) Mesure de FMR en fonction du champ magnétique appliqué suivant l'axe facile

Les propriétés dynamiques de FeCo recuit sont analysées sous deux points de vue :

- Le comportement de FeCo à l'état naturel (aucun champ magnétique appliqué), figure 1.c. On retrouve bien un comportement LLG de la perméabilité, comme en atteste l'ajustement. De cet ajustement, on extrait une fréquence de résonance modérée,  $f_r = 2.4$  GHz. On note que les pertes dynamiques restent importantes avec une largeur de raie à mi hauteur  $\Delta f = 1$  GHz, soit une constante d'amortissement de l'ordre de  $\alpha \sim 0.015$ .

- La seconde analyse, riche d'informations, est la mesure de la fréquence de résonance en fonction du champ appliqué (FMR), comme illustré figure 1.d. Cette dépendance est quasi linéaire pour les faibles champs (cf. II.4.4). L'extrapolation de la droite à fréquence nulle nous donne le champ d'anisotropie dynamique  $H_{k,dyn}$ . Il a une valeur proche de celle évaluée en statique avec  $H_{k,dyn} = 30$  Oe, comme généralement observé. De la pente de la droite, on retire soit la valeur de l'aimantation  $M_s$ , soit le rapport gyromagnétique  $\gamma_0$  (quantification du ratio entre le moment orbital et le moment de spin).  $M_s$  étant déterminé par mesure statique, nous déterminons  $\gamma_0$  qui est une valeur généralement mal connue, mais qui se mesure ainsi très simplement :  $\gamma_0 = 2.85$  MHz/Oe. C'est une valeur proche des valeurs théorique de l'électron libre (2.8 MHz/Oe).
- De la mesure de FMR, on observe également l'évolution de  $\Delta f$  en fonction du champ magnétique appliqué. On tend à saturation vers 0.6 GHz, soit un amortissement  $\alpha$  intrinsèque de l'ordre de 0.0085, ce qui est une valeur modérément faible.

Mesures Statiques			Mesures Dynamiques			
$M_s$	$H_c$	$H_{k,stat}$	$f_r$	$\Delta f$	$H_{k,dyn}$	$\gamma_0$
23.5 kOe	17 Oe	30 Oe	2.4 GHz	1 GHz	30 Oe	2.85 MHz/Oe

Tableau 2 : Récapitulatif des paramètres de  $Fe_{65}Co_{35}$  (25nm) extrait lors de mesures statiques et dynamiques.

### 2.3) Ni<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>

Ni<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> est un alliage antiferromagnétique métallique ( $\sigma \sim 100 \mu\Omega.cm$ ). Il présente cependant quelques spécificités par rapport à ses homologues (FeMn, IrMn, RhMn...). Les AF à base de Mn les plus courants sont de structure cubique face centrée (cfc) désordonnée, c'est-à-dire avec une répartition aléatoire sur les sites cristallographiques. De plus, ils présentent souvent une anisotropie d'échange après dépôt, même si un traitement thermique la favorise toujours.

A l'état brut de dépôt, la structure du NiMn est aussi cfc désordonnée (figure 1.a), mais n'est que très faiblement antiferromagnétique ;  $J_{ex}$  ne dépasse pas  $0.05 \cdot 10^{-7} J.cm^{-2}$  [7]. Ce n'est qu'après traitement thermique que la phase AF du NiMn apparaît. Elle est appelée phase L<sub>1</sub>0 (figure 1.b) et correspond à une structure tétragonale face centrée (tfc). C'est l'axe z qui est tétragonal, avec une succession de plans de Ni et Mn suivant cet axe. Il apparaît de plus en diffraction de neutrons [3] que les moments magnétiques sont principalement portés par les atomes de Mn, antiparallèles avec leurs plus proches voisins. Cette transformation de phase cfc  $\rightarrow$  L<sub>1</sub>0 n'est jamais totale [4]. La structure des ferromagnétiques étant souvent cfc avec un paramètre de maille proche de celui du NiMn cfc, il se peut créer une relation d'épitaxie locale à l'interface F/AF qui peut être défavorable. C'est par exemple une explication avancée pour couplage faible entre NiFe et NiMn qui ont des paramètres de maille très proches [8].

La température de Néel ( $T_N$ ) de NiMn en phase L<sub>1</sub>0 trouvée dans la littérature est de l'ordre de 800°C [9]. Pour nous, ceci est avantageux d'un point de vue applicatif puisque le NiMn restera antiferromagnétique pour des températures compatibles avec les conditions d'utilisation de nombreux dispositifs magnétiques, des capteurs à la RF (vannes de spins, jonctions tunnel, inductances, filtres...).



Malgré une température de Néel élevée, la température de blocage ( $T_B$ ) de NiMn est plus faible et généralement observée autour de 400°C [7, 9]. C'est une particularité de NiMn alors qu'habituellement  $T_B \sim T_N$ . Notons que  $T_B$  de NiMn reste toutefois la plus élevée des AF, ce qui est un autre avantage applicatif. La constante d'échange de NiMn est relativement stable jusqu'à 200°C, puis commence à décroître plus ou moins linéairement avec l'augmentation de la température.

Comme précisé précédemment, il est nécessaire de recuire les empilements à base de NiMn afin d'obtenir des valeurs d'échange importantes. Après recuit, la constante de couplage d'échange interfacial  $J_{ex}$  est très élevée : entre 0.2 et 0.5  $10^{-7}$  J.cm<sup>-2</sup> [2, 7]. L'activation thermique de la phase  $L_{10}$  débute environ à 220°C. Plus la température de recuit sera élevée, plus cette phase sera rapidement stabilisée. A titre d'exemple, nous avons relevé qu'un recuit de 4h à 260°C a le même effet qu'un recuit de 1h à 300°C. En revanche, les atomes de manganèse sont très mobiles, et plus la température sera augmentée, plus il y aura risque de diffusion de Mn dans la couche F, ce qui peut avoir comme conséquence de diminuer le champ d'échange d'une part, et souvent de dégrader les propriétés douces de F.

NiMn est aussi différent des autres AF à base de Mn, de par l'épaisseur critique ( $e_{cr}$ ) d'apparition du couplage AF (environ 20 nm) et son épaisseur optimale ( $e_{opt}$ ) pour laquelle la constante d'échange atteint un plateau, de l'ordre de 50 nm. En comparaison, ces caractéristiques sont respectivement de 3 nm et 6nm pour IrMn, et 5 nm et 12 nm pour FeMn.

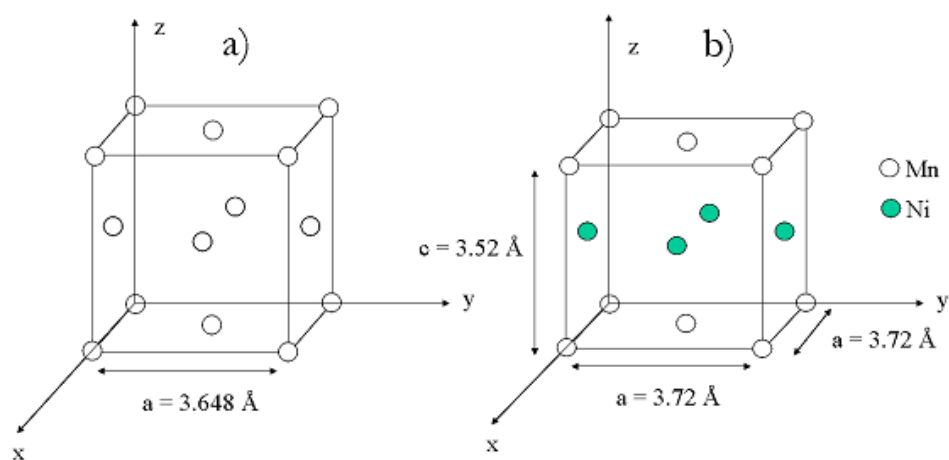


Figure 2 : Structures cristallographiques de NiMn en couche mince : a) brut de dépôt en phase cfc, b) phase ordonnée  $L_{10}$  après recuit.

## 2.4) Empilement référence F/AF

Un des effets connu et remarquable du couplage d'échange est de décaler le cycle d'hystérésis de la couche ferromagnétique de l'origine des champs (figure 3.a vs. figure 1.b). Si ce décalage est suffisamment important, on peut obtenir un état rémanent de l'aimantation ( $H=0$ ) très proche de l'état parfaitement saturé, et donc exempt de parois et domaines. Par analogie aux ferrites, on parlera d'état polarisé, et ici « auto-polarisé » puisqu'il n'y pas notion de recours à un champ magnétique extérieur. De plus, ce couplage d'échange est inversement proportionnel à l'épaisseur de F. Il est donc possible d'en contrôler l'amplitude.

En outre, l'ajout de cette anisotropie (unidirectionnelle) permet de décaler également la fréquence de résonance ferromagnétique car elle augmente avec le champ effectif (cf. I.3.4). Cela est d'un intérêt considérable pour les applications micro-ondes désirant utiliser de la perméabilité à haute fréquence sans ajout de champ statique.

Sur la figure 3, nous prenons l'exemple d'une configuration F/AF Bottom (F sur AF) type, dont les propriétés sont résumées table 2, et qui nous servira de repère comparatif pour le tricouche final F/AF/F. La bicouche étudiée est :

$$\text{Si} / \text{Ru}(5\text{nm}) / \text{NiMn}(50\text{nm}) / \text{FeCo}(25\text{nm}) / \text{Ru}(5\text{nm})$$

Tout d'abord analysons les propriétés statiques, présentées figure 3.a :

- Sur l'axe dit facile (direction du champ de piégeage), on constate que l'échange antiferromagnétique est fort :  $J_{ex} = 0.35 \cdot 10^{-7} \text{ J.cm}^2$  et  $H_{ex} = 75 \text{ Oe}$ , bien qu'inférieur aux valeurs trouvées au cours de la thèse de Y. Lamy ( $J_{ex} = 0.45 \cdot 10^{-7} \text{ J.cm}^2$ ). Par contre, le champ coercitif est lui beaucoup plus faible :  $H_c = 30 \text{ Oe}$  (contre 50 Oe pour Y. Lamy), ce qui permet de rester dans un état rémanent totalement saturé (comportement « dur »).
- Sur l'axe difficile (ici à  $90^\circ$  du champ de piégeage, axe de perméabilité), on remarque un effet extrêmement bénéfique du couplage d'échange : le cycle d'hystérésis reste fermé (comportement « doux »). Cela signifie que l'on est bien présence d'une rotation cohérente de l'aimantation, ce qui nous place au plus près de l'approximation macrospin. A partir de la pente du cycle (partie quasi linéaire) et des branches de saturation, on estime le champ d'anisotropie effective statique  $H_{k,stat}$  à 115 Oe. C'est une valeur élevée ; la fréquence le sera donc aussi.

Du point de vue des propriétés dynamique, on retiendra :

- La perméabilité « naturelle » (sans application de champ magnétique extérieur) présentée figure 3.b a des propriétés qui sont exceptionnelles au regard de ceux préalablement divulguées : la fréquence de résonance  $f_r$  est à 5 GHz, la largeur de raie à mi hauteur  $\Delta f$  est de 0.37 GHz ( $\alpha \sim 0.006$ ) et la perméabilité quasi statique  $\mu_{dc}$  vaut 180. Ce sont des résultats d'un point de vue applicatif exceptionnels, bien au dessus de l'état de l'art. De plus, avec le couplage d'échange, l'amortissement est divisé par trois en comparaison de la couche libre de FeCo, ce qui est un avantage certain. Cette réduction d'amortissement est principalement due à une aimantation nettement plus homogène une fois couplée.
- Ici encore, l'étude de FMR en fonction du champ magnétique appliqué (figure 3.c) s'avère extrêmement enrichissante. Elle superposée au cycle d'hystérésis statique. La courbe est caractéristique du comportement de matériaux couplés antiferromagnétiquement, signée par une asymétrie de la fréquence de résonance en fonction du champ appliqué (cf. Chap I.3.4). Par ajustement de cette courbe, on extrait le champ effectif d'anisotropie dynamique ( $H_{eff,dyn} = 88 \text{ Oe}$ ), le champ d'échange dynamique ( $H_{ex,dyn} = 39 \text{ Oe}$ ) et le rapport gyromagnétique  $\gamma_0$  (cf. Chap II.4.4).

De  $H_{eff,dyn}$  on déduit alors l'anisotropie rotatoire  $H_{k,rot} = 36 \text{ Oe}$  et l'anisotropie intrinsèque au ferromagnétique  $H_{k,int} = 52 \text{ Oe}$ . On notera que  $H_{k,rot}$  est élevée, à peu près la même valeur que  $H_{ex,dyn}$ . L'anisotropie de F a elle augmenté de 20 Oe, en raison de son couplage avec AF.

Enfin on nous évaluons  $\gamma_0 = 2.88$  MHz/Oe, ce qui est une valeur proche de celle de la couche de FeCo libre.

En parallèle, figure 3.d, nous traçons la largeur de raie à mi-hauteur en fonction du champ magnétique appliqué. On observe une très forte augmentation de l'amortissement corrélée au retournement de l'aimantation, dont le caractère « visqueux » est plus important (retournement de parois).

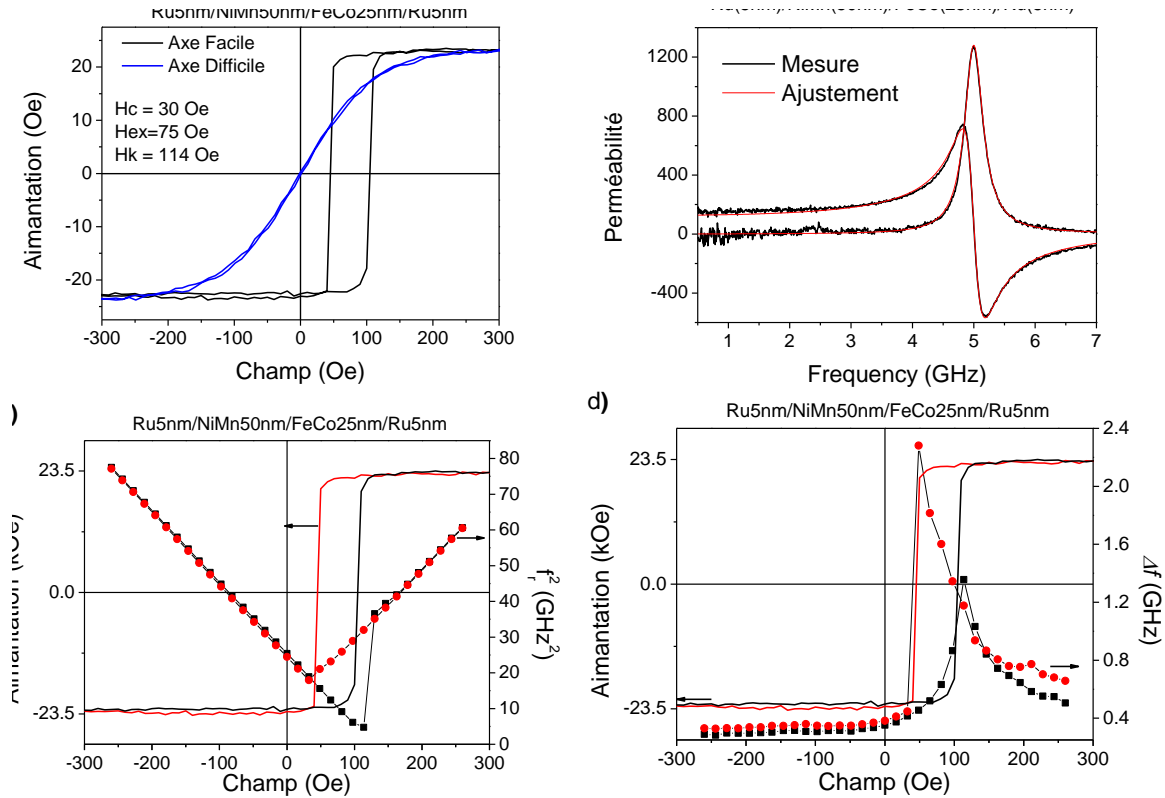


Figure 3 : a) Cycle d'hystérésis du bicouche AF/F, b) Spectre de perméabilité de l'empilement à champ nul, c) fréquence de résonance en fonction du champ magnétique appliqué, d) de même pour l'amortissement du système.

Mesures Statiques			Mesures Dynamiques					
$H_c$	$H_{k,stat}$	$H_{ex,stat}$	$f_r$	$\Delta f$	$H_{k,dyn}$	$H_{ex,dyn}$	$H_{k,rot}$	$\gamma_0$
30 Oe	115 Oe	75 Oe	5 GHz	0.36 GHz	52 Oe	39 Oe	36 Oe	2.88 MHz/Oe

Tableau 3 : Récapitulatif des paramètres du bicouche NiMn(50nm)/Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub>(25nm) extraits lors de mesures statiques et dynamiques.

Nous avons également réalisé une étude en faisant varier l'épaisseur de F :  $e_F = 10, 15, 20$  et 25 nm. Un phénomène est à mettre en avant ici : si on diminue l'épaisseur ferromagnétique, la largeur de raie va augmenter, mais cette fois ci à cause de l'effet de diffusion à deux magnons [10, 11] qui amplifie fortement l'amortissement effectif (chapitre I.3.4). Ce peut être un facteur limitant à la recherche des hautes fréquences à faibles pertes qui nécessite de diminuer  $e_F$ . Ceci est bien mis en avant, visuellement par la figure 4.a, et de manière

quantitative sur la figure 4.b. On y observe une très forte augmentation de  $\Delta f$  (fois 3) lorsque  $e_F$  diminue. Cette mesure peut être ajustée par une dépendance en  $e_F^{-2}$ , bien que le nombre de point soit ici faible. On trouverait dans ce cas un  $\Delta f$  de 0.25 GHz pour 50nm de F, ce qui serait exceptionnellement faible. Remarquons que la dépendance du champ effectif dynamique  $H_{eff,dyn}$  suit bien la loi en  $1/e_F$ , mais on se trouve au début de courbe et l'effet n'est donc pas visible.

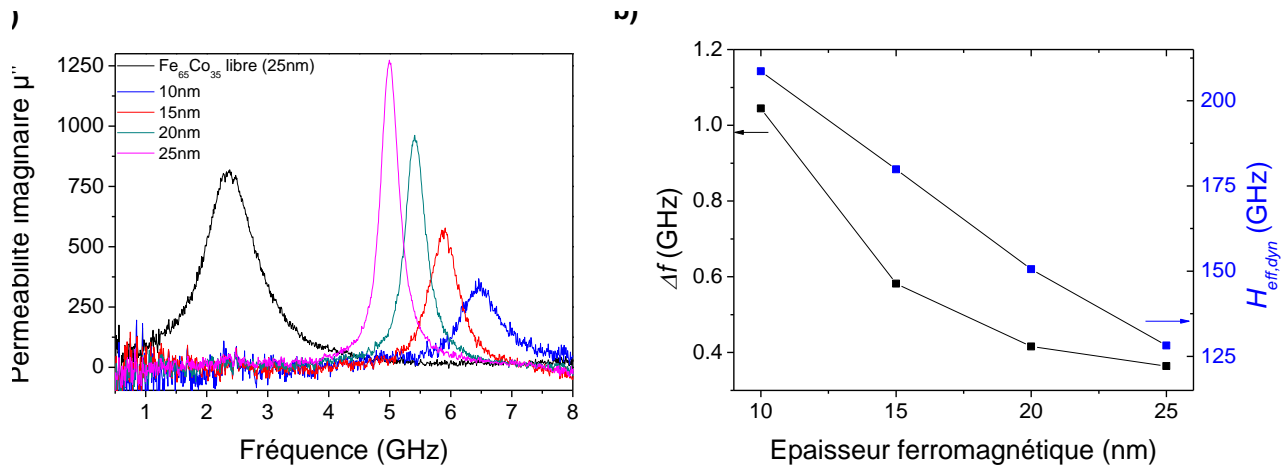
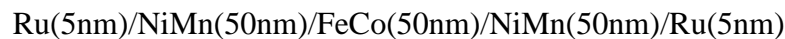


Figure 4 : a) Spectre de perméabilité de bicouches F/AF, b) Largeur de raie à mi hauteur et champ d'échange dynamique pour différentes épaisseurs ferromagnétiques

## 2.5) Electrode magnétique finale F/AF/F

A présent, intéressons nous à l'électrode magnétique finale qui sera utilisée plus tard au cours des diverses applications. Originellement, Y. Lamy avait développé un empilement de type AF/2F/AF afin de bénéficier d'un double couplage d'échange aux interfaces, et donc repousser le plus possible la fréquence de résonance vers les hautes valeurs. L'empilement précis était :



Avec comme propriétés statiques  $J_{ex} = 1.10^{-7} \text{ J.cm}^2$ ,  $H_{ex} = 110 \text{ Oe}$ ,  $H_c = 61 \text{ Oe}$  et  $H_k = 154 \text{ Oe}$ .

Nous avons fait le choix de travailler sur une structure légèrement différente : F/AF/F. Les raisons sont :

- NiMn et ses propriétés sont très sensibles à l'oxygène, il est donc préférable de limiter cette interaction au maximum dans l'optique de l'intégration de STO.
- Un gain de compacité
- Une limitation des courants de Foucault

Revenons particulièrement sur ces deux derniers points. Jusqu'à présent, nous n'avons pas abordé la notion d'efficacité de couplage onde-matière, qui est un point limitant aux applications. En effet, plus la quantité de matière magnétique est importante, plus ce couplage est important (notion de perméance  $\mu^*e_F$ ). Or, on observe ici que pour l'empilement

développé au cours de [2], AF/2F/AF, il a 50 nm de matière magnétique contre 150 nm de matière magnétiquement inerte, soit un facteur de remplissage d'environ 1/3. De plus, ces matériaux sont métalliques, ce qui limite très rapidement la multiplication de cet empilement à cause des courants de Foucault (typiquement \*2).

La solution que nous proposons, F/AF/F, a premièrement l'avantage de réduire ce facteur de remplissage à 1/2. Pour cela, nous bénéficions du fait que NiMn a un couplage interfacial quasi identique à chaque interface (Top et Bottom), ce qui assure un champ d'échange identique pour chaque couche ferromagnétique. Nous obtenons expérimentalement des propriétés rigoureusement identiques pour les deux versions (F/AF/F et AF/2F/AF), tant au niveau statique que dynamique. Ainsi, pour un empilement double, nous sommes très peu affectés par les courants de Foucault, et le couplage onde-matière est significativement augmenté.

L'empilement magnétique stabilisé qui sera utilisé tout au long de la suite du manuscrit est donc le suivant :

$$\text{Ru}(5\text{nm}) / \text{FeCo}(25\text{nm}) / \text{NiMn}(30\text{nm}) / \text{FeCo}(25\text{nm}) / \text{Ru}(5\text{nm})$$

On remarquera ici que l'épaisseur de NiMn a été optimisée afin d'augmenter le taux de remplissage en F. Le couplage d'échange est certes diminué, mais l'échantillon reste dans un état rémanent totalement saturé, et la fréquence de résonance n'est que faiblement décalée (200 MHz). Les principales caractéristiques de cet empilement sont données sur la figure 5, et résumées dans le tableau 4.

On obtient alors comme propriétés statiques (figure 5.a) :  $J_{ex} = 0.47 \cdot 10^{-7} \text{ J.cm}^2$ ,  $H_{ex} = 50 \text{ Oe}$ ,  $H_c = 35 \text{ Oe}$  et  $H_{sat} = 120 \text{ Oe}$ . L'axe difficile reste très faiblement hystérétique, on est donc toujours dans l'approximation macrospin.

Pour le comportement dynamique, on note toujours un très bon comportement de la perméabilité naturelle figure 5.b. De l'ajustement de la perméabilité, on obtient  $f_r = 4.8 \text{ GHz}$ ,  $\Delta f = 0.48 \text{ GHz}$  ( $\alpha \sim 0.007$ ) et  $\mu_{dc} = 180$ . On remarquera qu'en comparaison à l'empilement de référence F/AF, il y a une augmentation de l'amortissement non négligeable : on passe d'une largeur de raie à mi-hauteur de 0.37 GHz à 0.5 GHz. Une asymétrie du couplage d'échange aux deux interfaces pourrait être évoquée, mais d'autres phénomènes sont également susceptibles d'entrer en jeu.

Toujours afin d'extraire le plus possible d'informations dynamiques, nous avons mesuré l'évolution de la fréquence de résonance au carré en fonction du champ magnétique appliqué suivant l'axe facile. Cette courbe est superposée au cycle d'hystérésis en axe facile du tricouche, figure 5.c. De l'ajustement de la mesure, on extrait le champ effectif d'anisotropie  $H_{eff,dyn}$  (75.5 Oe). On en retire les paramètres suivants : un champ d'échange dynamique  $H_{ex,dyn} = 22.5 \text{ Oe}$ , une anisotropie rotatoire  $H_{k,rot} = 27.5 \text{ Oe}$  et l'anisotropie intrinsèque au ferromagnétique :  $H_{k,int} = 48 \text{ Oe}$ . On remarquera que la valeur de  $H_{k,rot}$  est très élevée, supérieure à celle de  $H_{ex,dyn}$ , probablement du fait de la réduction de l'épaisseur de NiMn. Par contre,  $H_{k,int}$  reste du même ordre que pour la version F/AF. Enfin le rapport gyromagnétique est ajusté à :  $\gamma_0 = 2.97 \text{ MHz/Oe}$  ; il a significativement augmenté en comparaison à la couche libre ou la bicouche F/AF.

Figure 4.d, on observe le même comportement de la largeur de raie à mi-hauteur en fonction du champ appliqué que pour la structure de référence F/AF, comportement typique du couplage d'échange.

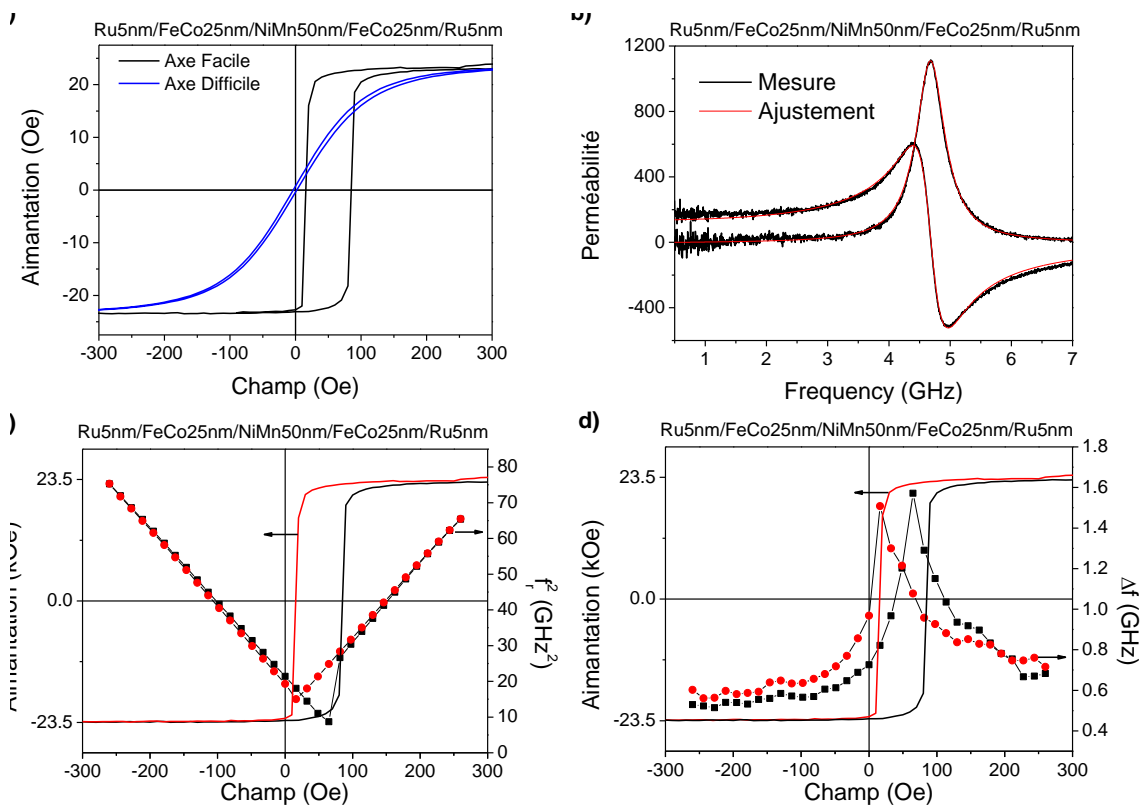


Figure 5 : a) Cycle d'hystérésis du tricouche F/AF/F, b) Spectre de perméabilité de l'empilement à champ nul, c) fréquence de résonance en fonction du champ magnétique appliqué, d) de même pour l'amortissement du système.

Mesures Statiques			Mesures Dynamique					
$H_c$	$H_{k,stat}$	$H_{ex,stat}$	$f_r$	$\Delta f$	$H_{k,dyn}$	$H_{ex,dyn}$	$H_{k,rot}$	$\gamma_0$
35 Oe	120 Oe	50 Oe	4.8 GHz	0.48 GHz	48 Oe	22.5 Oe	27.5 Oe	2.97 MHz/Oe

Tableau 4 : Récapitulatif des propriétés du tricouche référence  $Fe_{65}Co_{35}(25nm)/NiMn(50nm)/Fe_{65}Co_{35}(25nm)$  extraits lors de mesures statiques et dynamiques.

On soulignera ici deux points :

- la branche « Aller » (figure 5.c noir) du cycle  $f_r^2$  vs.  $H_0$  ne se superpose pas complètement à la branche « Retour » (figure 5.c rouge) à bas champ
- le rapport gyromagnétique a fortement augmenté en comparaison à la structure de référence F/AF.

Une hypothèse concernant  $\gamma_0$  serait donc que l'ajustement du cycle de FMR est tronqué par cette hystérésis. Cependant, un ajustement individuel des branches « Aller » et « Retour » donnent la même valeur de  $\gamma_0$ . En revanche, on observe un léger changement quant aux valeurs de  $H_{ex,dyn}$  (+3 Oe) et de  $H_{eff,dyn}$  (+5.5 Oe). Cette différence pourrait être attribuée :

- soit au fait que la constante de couplage n'est pas strictement identique à chaque interface, bien que la mesure montre une réponse homogène de la structure (en statique et dynamique).
- soit à une modification de la configuration magnétique de l'AF par F (domaines AF...), d'autant plus que ce dernier possède une très forte anisotropie rotatoire.

## 2.6) Conclusion électrodes magnétiques

En conclusion, nous avons ici une électrode magnétique présentant de nombreux avantages pour les applications micro-ondes : elle a un comportement dur suivant l'axe de piégeage, et l'état rémanent de l'aimantation est totalement saturé ; nous le qualifions « d'état auto-polarisé » par analogie aux ferrites. De plus, cette polarisation est ajustable suivant l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Suivant l'axe difficile, le comportement est qualifié de doux, car la rotation de l'aimantation est cohérente et donc la perméabilité se rapproche de la description macrospin et du model LLG. Enfin, les propriétés dynamiques exhibées par cet empilement sont exceptionnelles : une fréquence de résonance naturelle à 5 GHz, une largeur de raie à mi hauteur de 0.48 GHz (très peu de pertes jusqu'à ~ 4 GHz) et une perméabilité quasi statique de 180.

## III) Matériaux diélectriques

Les couches minces à forte constante diélectrique sont généralement déposées amorphes, et nécessitent à posteriori un recuit à température élevée, supérieure à 550°C. Ou alors, il faut déposer le matériau sur un substrat chauffé à une température moindre (~ 300 °C), mais sous flux d'oxygène. Aucune de ces deux possibilités n'est vraiment compatible avec les empilements magnétiques que nous venons de présenter. Au cours de sa thèse, Julie Guillan a travaillé sur une méthode de dépôt par faisceau d'ion (IBS). Cette technique a l'avantage de faire baisser la température de cristallisation de divers diélectriques, notamment les pérovskites SrTiO<sub>3</sub>, BaTiO<sub>3</sub> et BaSrTiO<sub>3</sub>, en combinaison avec des électrodes de platine. L'origine de cet abaissement n'est pas réellement connue, mais il est supposé que le dépôt IBS est très énergétique, ce qui implanterait des nanocristallites de pérovskite dans une matrice amorphe et qui faciliterait ensuite la cristallisation du matériau. Notre choix s'est orienté sur le SrTiO<sub>3</sub>, que nous appellerons STO par la suite. La raison en est que c'est celui des matériaux cités précédemment qui cristallise à la plus basse température (~ 300°C), les autres cristallisant aux alentours de 400 - 450 °C, et semble donc le plus adapté à nos électrodes. Pour démarrer l'étude, nous conservons des électrodes de platine que nous remplacerons progressivement par du ruthénium puis par les électrodes magnétiques définies juste auparavant.

### 3.1) Généralité sur SrTiO<sub>3</sub> en couches minces

La structure de SrTiO<sub>3</sub> est de type pérovskite cubique de groupe d'espace Pm3m et de paramètre de maille  $a = 3,905 \text{ \AA}$ . STO est paraélectrique à température ambiante. C'est un

ferroélectrique « incipient » (naissant) avec une température de Curie  $T_C$  extrapolée aux alentours de 35 K. En effet la transition ferroélectrique n'apparaît pas dans les conditions normales de pression à cause de fluctuations quantiques [12, 13]. Le STO ne présente pas de boucle d'hystérésis même à très basse température, mais la transition ferroélectrique peut-être induite par l'introduction d'un dopant [14] ou de contraintes [15]. Vers 110 K, le STO connaît une transition non ferroélectrique de la phase cubique vers une phase quadratique [16]. Il s'agit d'une transition du deuxième ordre et la distorsion est très faible ( $c/a = 1,0005$ ). Cette transition est corrélée avec une rotation des octaèdres d'oxygène les uns par rapport aux autres [17].

De nombreux auteurs ont étudié l'influence de l'épaisseur des films minces sur la constante diélectrique [18, 19]. Ils rapportent une diminution de la constante diélectrique en dessous d'une épaisseur critique. Dans le cas de STO, cette épaisseur critique se situe approximativement entre 30 et 70 nm [20]. Cette diminution de la permittivité peut être expliquée de différentes façons. Voici une liste des possibilités les plus des hypothèses les plus plausibles :

- L'existence d'une couche interfaciale de faible permittivité : de nombreux auteurs rapportent la présence d'une couche de faible  $\epsilon$  à l'interface diélectrique/électrode. Cette couche ajoute une capacité en série dont l'influence augmente lorsque l'épaisseur du diélectrique diminue. Les pertes, au contraire, augmentent. C'est l'hypothèse la plus couramment avancée.
- La microstructure ou un effet de taille de grain : dans de nombreux cas la microstructure des films minces est affectée par une grande variation de l'épaisseur des couches. Du moins, la taille de grain varie dans le cas de films colonnaires ou épitaxiés. Pour les couches ferroélectriques il est donc possible d'observer un impact sur la constante diélectrique, néanmoins pour les couches paraélectriques, il n'y aurait pas de corrélation évidente.
- La porosité ou une phase secondaire : la densité de la phase recherchée est souvent réduite pour des films très fins à cause de l'élaboration.
- Une contrainte mécanique : en principe un effet de contrainte mécanique sur la permittivité est concevable. On s'attend à une influence du substrat et de son coefficient d'expansion thermique par rapport à celui du diélectrique, notamment lorsqu'il s'agit de silicium.
- Une variation de stœchiométrie au cours du dépôt.
- Le libre parcours moyen des phonons : chaque phonon voyageant dans un solide a une certaine durée de vie et donc un libre parcours moyen. Si le libre parcours moyen des phonons du mode mou (responsable d'une constante diélectrique élevée) est limité par l'épaisseur, la permittivité sera affectée.

### **3.2) La capacité MIM**

La capacité MIM – Métal-Isolant-Métal – est un condensateur plan constitué d'une couche isolante prise en sandwich entre deux couches métalliques qui font office d'électrode, comme montré figure 6. Elle est très utile pour caractériser la constante diélectrique d'isolants et est extrêmement facile à réaliser (un seul niveau de gravure). Le principe de réalisation de



nos capacités MIM est : après dépôt des différents matériaux (électrodes et isolant), nous faisons une lithographie avec un masque 100 mm contenant des motifs carrés de 1 mm, 500  $\mu\text{m}$ , 300  $\mu\text{m}$  et 200  $\mu\text{m}$  de côté. Puis, nous gravons les motifs par IBE (Ion Beam Etching) jusqu'à l'électrode inférieure métallique qui est conservée « pleine tranche » afin de faciliter la prise de contact lors des mesures. La plaque est ensuite découpée en puces afin de pouvoir faire différentes expériences, notamment en température.

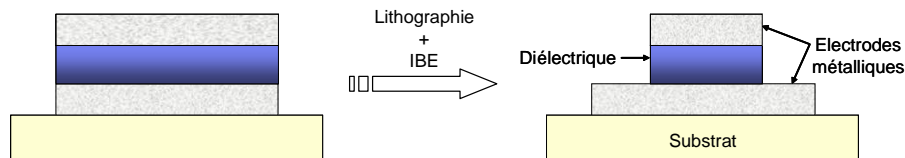


Figure 6 : Schéma d'une capacité MIM.

### 3.3) Méthodes de dépôt et cristallisation

Nous avons à notre disposition deux méthodes de dépôts : PVD et IBS, et comme précisé auparavant, la technique IBS permet une température de cristallisation à plus basse température.

#### a) PVD

Nous avons démarré cette étude avec une cible de STO stœchiométrique frittée et pressée à chaud équipant le bâti PVD dans lequel sont réalisées les électrodes magnétiques. L'intérêt ici est de pouvoir faire un empilement complet in situ, gage de qualité pour les interfaces. La température de cristallisation a été évaluée à 550°C par le biais de capacités MIM de l'état de l'art (électrodes de platine), pour une épaisseur de 50 nm de STO. La constante diélectrique a été évaluée à  $\epsilon_r = 18$  dans la phase amorphe et à  $\epsilon_r = 100$  une fois cristallisé. Des analyses par diffraction de rayons X (XRD) ont montré que nous avons les mêmes propriétés que l'état de l'art une fois cristallisé (figure 7). A l'issue de cette phase d'étude préliminaire, nous avons statué sur l'incompatibilité du STO PVD cristallisé avec les électrodes magnétiques. Nous nous tournons alors vers le dépôt IBS.

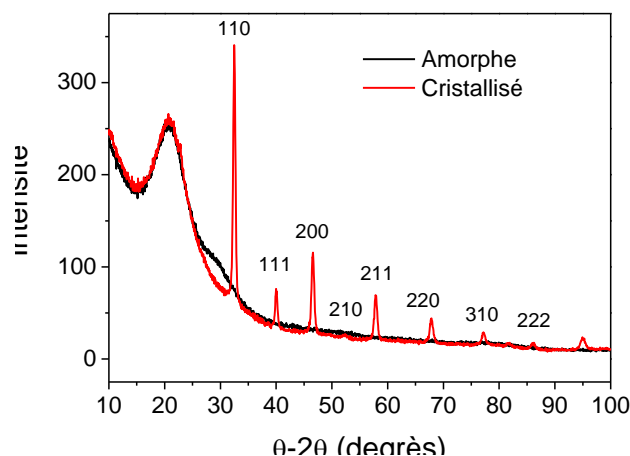
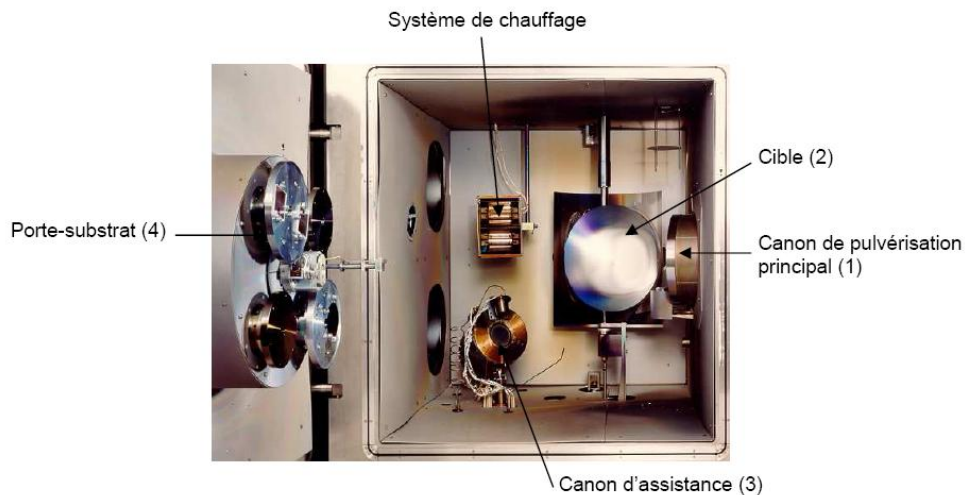


Figure 7 : Courbe  $\theta$ - $2\theta$  de diffraction par rayon X du STO déposé en PVD, amorphe et cristallisé à 550°C.

## ***b) Dépôt par faisceau d'ion (IBS)***

Le dépôt par faisceau d'ions (IBS) est une technique semblable à la PVD dans laquelle des ions sont produits par une source et accélérés vers le matériau à pulvériser. Cette technique a l'avantage d'avoir, entre autre, une localisation du plasma dans le canon qui autorise des pressions de travail bien inférieures (d'une à deux décades) aux pressions nécessaires au maintien d'une décharge cathodique. Ces faibles pressions induisent un libre parcours moyen des atomes pulvérisés accru par rapport à des techniques classiques. Ainsi, le libre parcours moyen des espèces est de l'ordre du mètre en IBS alors qu'il est de l'ordre de quelques mm en PVD.



**Figure 8 : Photo et descriptif du bâti de dépôt IBS Oxford 500**

Les espèces pulvérisées arrivent donc sur le substrat avec une énergie plus grande qui peut atteindre la dizaine d'eV en IBS alors qu'en PVD, cette énergie est de l'ordre de la centaine de meV. Le flux de matière est également beaucoup plus directif en IBS. En ce qui concerne les oxydes, la stoechiométrie est généralement bien conservée. Enfin, la dissociation du plasma de la zone de dépôt évite toute interaction du plasma avec la cible et le substrat. Les matériaux obtenus par IBS contiennent donc moins d'impuretés et sont plus denses que par PVD. En outre, le substrat sur lequel croît la couche voit sa surface moins affectée en termes de rugosité et d'espèces redéposées. Les interfaces entre couches sont également de plus grande qualité.

L'équipement utilisé pour cette étude est un bâti de marque Oxford 500 qui permet de réaliser des dépôts par pulvérisation par faisceau d'ions assistée par un faisceau d'ions secondaire ou Dual Ion Beam Sputtering (DIBS). Nous utilisons une cible de STO semblable à celle utilisée en PVD, provenant du même fournisseur. Le porte-échantillon de type satellite (mouvement de rotation autour de 2 axes) permet d'obtenir une bonne uniformité en épaisseur (98%) jusqu'à des substrats de 200 mm de diamètres.

### ***c) Cristallisation à basse température***

Au cours de la thèse de Julie Guillan, des analyses structurales en diffraction X, en réflectométrie X, au MEB et en EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) du STO n'ont pas permis d'expliquer finement ce mécanisme de cristallisation à basse température. Ces mesures ont été effectuées sur des échantillons Si/SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>/Pt/STO recuits à l'air libre. La présence d'oxygène permet aussi de combler des lacunes dans le STO durant le recuit, ce que nous ne pourrions pas faire dans nos expériences. Ces études ont cependant permis de mettre en avant certains points : il n'existe pas d'autres phases qu'amorphe et pérovskite lors de la cristallisation. La croissance est soit colonnaire, soit à partir de germes cristallins dans la matrice amorphe. La densité est plus élevée une fois cristallisée qu'amorphe, mais reste inférieure au massif et la rugosité augmente à la cristallisation. De plus, les joints de grains grossissent avec l'épaisseur, ce qui augmente les courants de fuite. La réflectométrie indiquerait par contre que le matériau a de la porosité. Au niveau de la texturation, le pic principal correspond à l'indexation <110>, mais <200> et <211> sont aussi fortement présents.

On suppose qu'en raison de la différence importante des énergies incidentes lors du dépôt, les tout premiers stades de croissance (quelques couches atomiques) font appel à des mécanismes également très différents. Ainsi, l'IBS pourrait favoriser l'implantation et la croissance de nucléites ou cluster à la surface du substrat, ou dans une matrice amorphe, à partir desquels démarrerait le processus de cristallisation collectif de la matrice qui elle est essentiellement amorphe. En effet, cette étape de nucléation qui permet ensuite la cristallisation est la phase qui requiert le plus d'énergie.

### **3.4) Electrodes (Pt, Ru) et analyse structurale**

Nous allons dans cette partie analyser la structure de SrTiO<sub>3</sub> cristallisé à basse température. Les électrodes seront dans un premier temps en platine, puis nous les remplacerons progressivement par des électrodes de ruthénium qui est l'élément qui débute et recouvre l'électrode magnétique (que nous nommerons aussi  $E_{Mag}$  par la suite).

Les différentes capacités MIM réalisées sont récapitulées tableau 5. Une première série (échantillons E1 -> E5), préliminaire, a fait l'objet d'une étude de la cristallisation de STO en fonction de la température de recuit. La deuxième série (échantillons E6, E7 et E8) est une optimisation de la reproduction de la cristallisation du STO à basse température et sert également de base à une étude structurale.

Dans la suite de cette partie, les échantillons présentés ont tous été recuits dans les conditions optimales pour  $E_{Mag}$  : une heure, à 300°C, sous vide et sous champ magnétique. Pour tous les échantillons, la constante diélectrique a été évaluée à  $\epsilon_r \sim 18$  dans la phase amorphe et  $\epsilon_r \sim 100$  une fois cristallisé. Nous reviendrons sur les mesures de permittivité un peu plus loin.

Ici, le paramètre important du dépôt est le débit d'oxygène injecté dans le canon. Nous avons testé trois conditions : 0 sccm, 20 sccm et 50 sccm d'O<sub>2</sub>. Dans tous les cas, le STO cristallise au minimum à 300°C. Par contre, plus le débit est important, plus la

température de cristallisation est basse ( $\Delta T_c \sim 50^\circ\text{C}$ ). Nous avons donc choisi l'option à 50 sccm d'O<sub>2</sub>, avec une tension de faisceau d'ions de 700 V et un courant de 70 mA.

<b>E1</b>	Pt(50 nm)		STO(50nm)			Pt(50nm)
<b>E2</b>	Pt(50 nm)	Ru(5nm)	STO(50nm)		Ru(5nm)	Pt(50nm)
<b>E3</b>		Ru(50nm)	STO(50nm)		Ru(50nm)	
<b>E4</b>	Pt(50 nm)	Ru(5nm)	E <sub>Mag</sub> STO(50nm)	E <sub>Mag</sub>	Ru(5nm)	Pt(50nm)
<b>E5</b>		Ru(5nm)	E <sub>Mag</sub> STO(50nm)	E <sub>Mag</sub>	Ru(5nm)	
<b>E6</b>	Pt(50 nm)		STO(77nm)			Pt(50nm)
<b>E7</b>		Ru(10nm)	STO(77nm)		Ru(10nm)	
<b>E8</b>		Ru(10nm)	E <sub>Mag</sub> STO(77nm)	E <sub>Mag</sub>	Ru(10nm)	

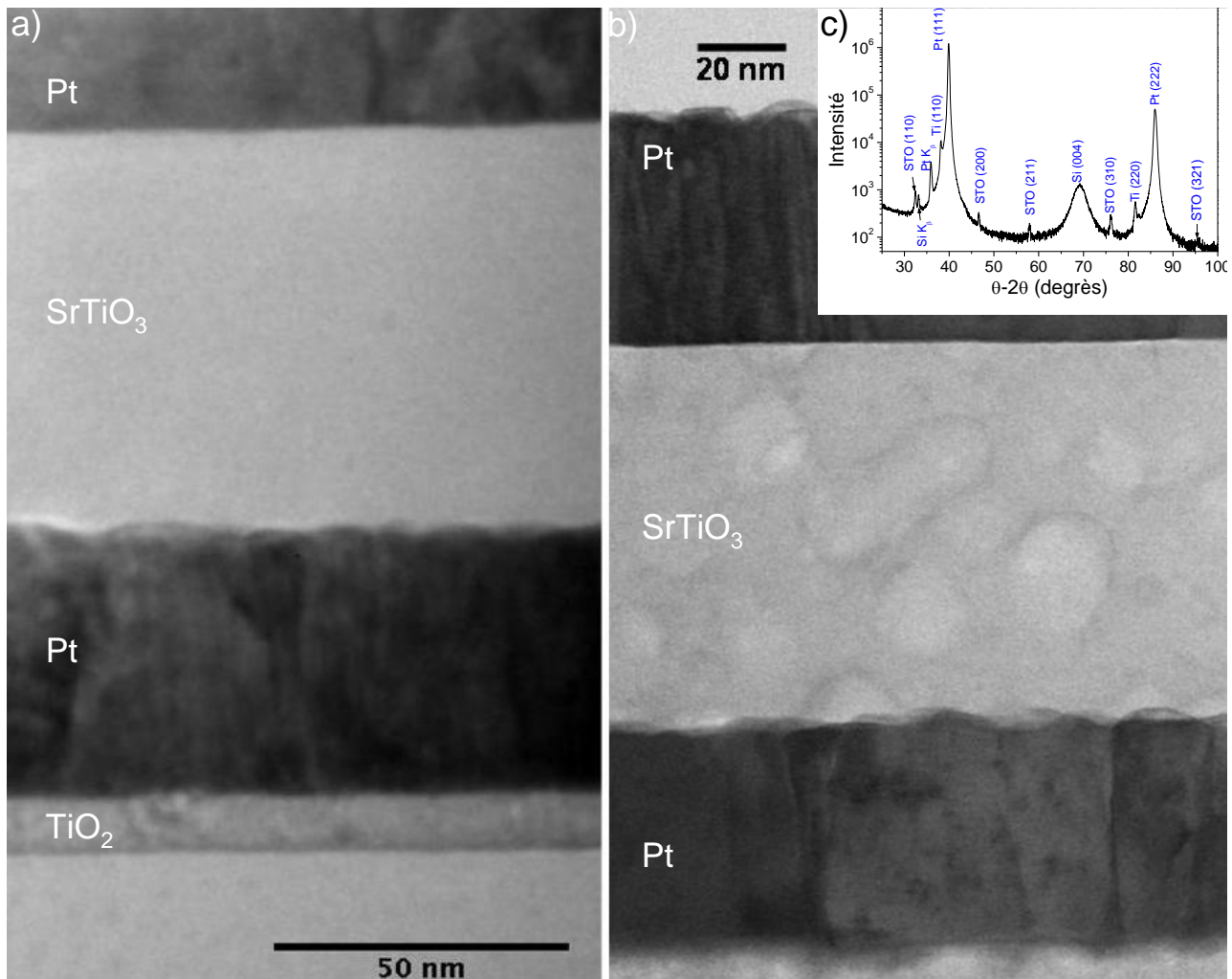
*Tableau 5 : Récapitulatif des diverses capacité MIM réalisées et étudiées.*

### **a) Electrodes Pt**

Les échantillons E1 et E6 utilisent l'empilement standard à base d'électrodes de platine développé au cours de la thèse de J. Guillan. Une sous couche TiO<sub>2</sub> sert de couche d'accroche au Pt qui n'adhère pas spontanément sur la silice. TiO<sub>2</sub> et Pt sont au préalable déposés par évaporation. Pour les deux cas, nous confirmons la cristallisation du STO au voisinage de 300°C, avec une permittivité de l'ordre de 100.

Les résultats de l'analyse structurale pour l'échantillon E6 sont présentés figure 9. On observe clairement la cristallisation du STO sur le graphe XRD, avec la présence des raies principales de STO correspondants à  $\langle 110 \rangle$ , puis  $\langle 200 \rangle$  et  $\langle 211 \rangle$ .

Les images TEM avant et après recuit de cet empilement sont présentées figures 9.a et 9.b, respectivement. Avant recuit, on note tout d'abord que le platine est très rugueux, et le STO est bien amorphe. Après cristallisation, la rugosité des grains de Pt s'accroît. Par contre, concernant le STO, on aperçoit des « bulles ». Nous savons d'après les mesures et la diffraction X qu'il est cristallisé, mais ces « bulles » ne sont pas typiques de la présence de grains. L'éventualité d'une pollution des lames étudiées est envisagée, mais ce phénomène se reproduisant pour toutes les lames, pour tous les empilements étudiés, et pour deux techniques différentes de préparation des lames, elle est écartée.



**Figure 9 : a) Image TEM de E6 amorphe b) Image TEM de E6 cristallisé, c) Diffraction X de E6**

En revanche, des images TEM haute résolution, figure 10, montrent une très grande cristallinité du STO, avec des plan cristallins très continus. Ces images ont été réalisées sur une zone contenant des « bulles ». Or, ces plans sont continus même sur ces zones (barres bleues). Ce ne peut donc être des grains. L'hypothèse qui sera avancée ici est la porosité. En effet, dans ces conditions, il est possible d'observer une continuité des plans atomiques. De plus, cela a été aussi constaté dans la thèse de J. Guillan par des mesures de réflectométrie X. Nous sommes actuellement dans l'attente de ces mesures afin de confirmer ou d'infirmer cette supputation.

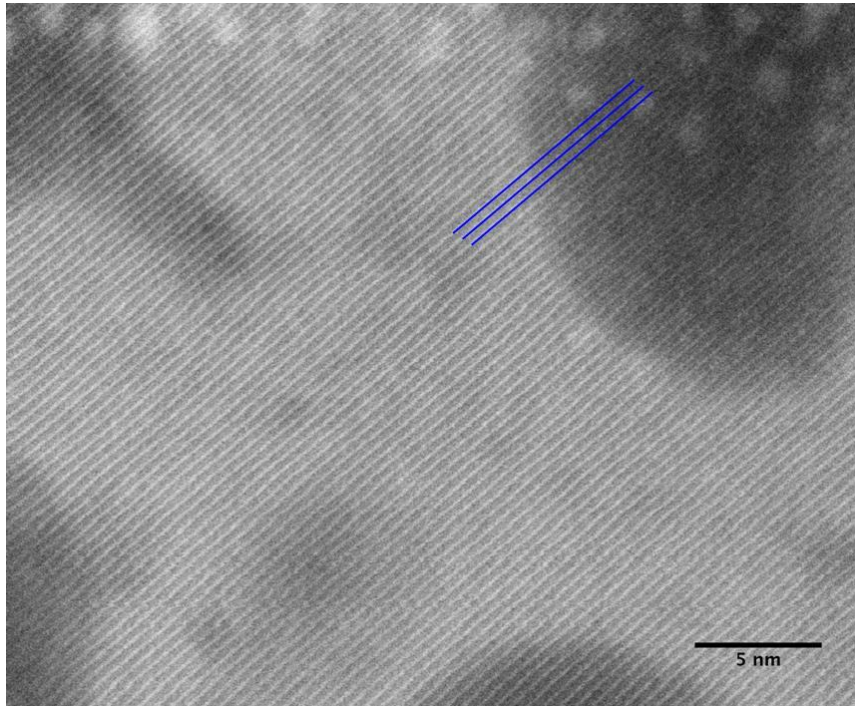


Figure 10 : Image TEM haute résolution de E6 cristallisé afin de tenter d'identifier l'origine des « bulles ».

### ***b) Electrodes Ru***

Dans un second temps, nous avons progressivement remplacé les électrodes Pt par des électrodes Ru (échantillons E2 = Pt/Ru(5nm), E3 = Ru(50nm) et E7 = Ru(10nm)) afin d'envisager la possibilité de passer à l'électrode magnétique  $E_{Mag}$ , qui rappelle le, contient une couche de 5 nm de Ru à chacune de ses interfaces. Dans ces trois cas nous confirmons la cristallisation du STO au voisinage de 300°C, avec une constante diélectrique de l'ordre de 100. Nous tenons à souligner que l'utilisation d'électrodes Ru pour la cristallisation du STO à basse température n'avait jamais été validée auparavant et que cette étude préliminaire conduit à un résultat marquant.

Visiblement, figure 11, il ne semble pas y avoir de différence de processus de cristallisation de STO avec les électrodes de Ru en comparaison aux électrodes Pt : les raies de diffraction en XRD sont identiques et les images TEM de STO sont très semblables. Toutefois, on confirme ici l'avantage de l'utilisation de Ru, qui est très peu rugueux, même après recuit comme en témoigne les photos 11.b et 11.d, étant donné que la qualité des interfaces est un point crucial à l'obtention de propriétés magnétiques optimales.

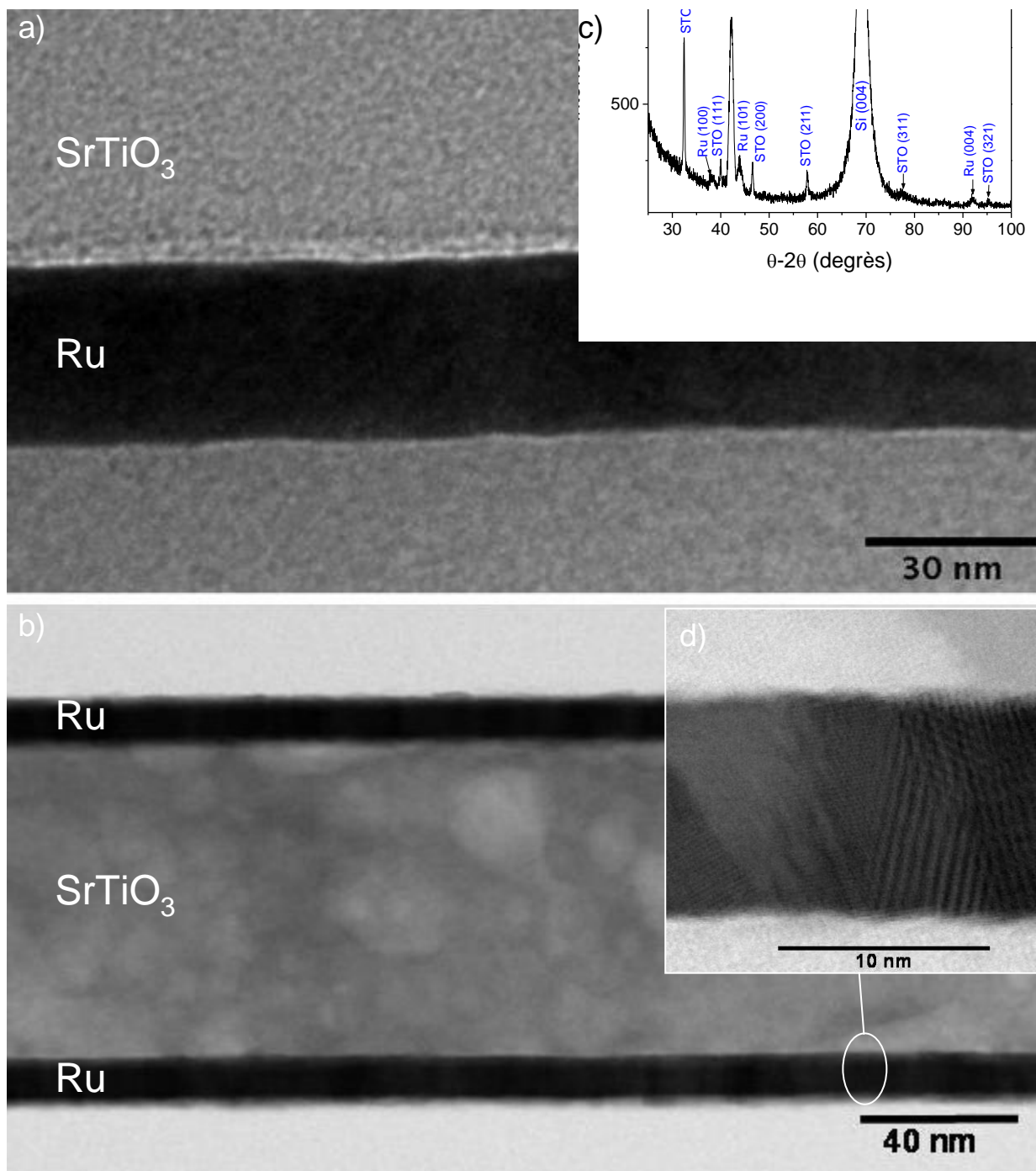


Figure 11 : a) Image TEM de E7 amorphe b) Image TEM de E7 cristallisé, c) Diffraction X de E7, d) zoom sur l'électrode Ru.

### 3.5) Dépendance en température de la cristallisation de STO

Nous présentons dans cette partie les résultats d'une étude de la cristallisation de STO en fonction de la température de recuit (sous vide, durant une heure) et de la nature de l'électrode. Par soucis de comparaison, nous incluons une première version de l'électrode magnétique, qui sera plus amplement détaillée dans la partie suivante (III.4). Ces résultats ont été obtenus à partir des échantillons E1, E2 et E4.

Précisons ici que les mesures de capacité ont été réalisées avec un analyseur d'impédance (de marque Hewlett Packard 4284A) avec une excitation à une fréquence de 100 kHz et une amplitude de 30 mV. Nous le verrons par la suite, les mesures de permittivité basse fréquence peuvent être affectées par des phénomènes de relaxation liés à la conduction, qui artificiellement augmentent les valeurs de capacité (cf. II.5.3). Ces effets peuvent être aussi dépendants de la nature de l'électrode et sont liés à des défauts de charges d'interface (impuretés et défauts du réseau cristallin qui introduisent des discontinuités de la polarisation où peuvent se déplacer les porteurs libres).

C'est pourquoi il faut considérer les valeurs de permittivité annoncées ici seulement comme indicatives ; nous le verrons par la suite, des mesures complémentaires montrent que les valeurs de permittivité extrapolées aux plus hautes fréquences (~ GHz) par un modèle Cole-Cole sont quasi identiques pour les trois cas, autour de  $\epsilon = 100$ . De même, les valeurs de température de cristallisation ne sont pas exactement reproductibles, sont dépendantes de l'épaisseur de STO et varient d'un dépôt à l'autre, mais sont toutes et toujours inférieures à 300°C.

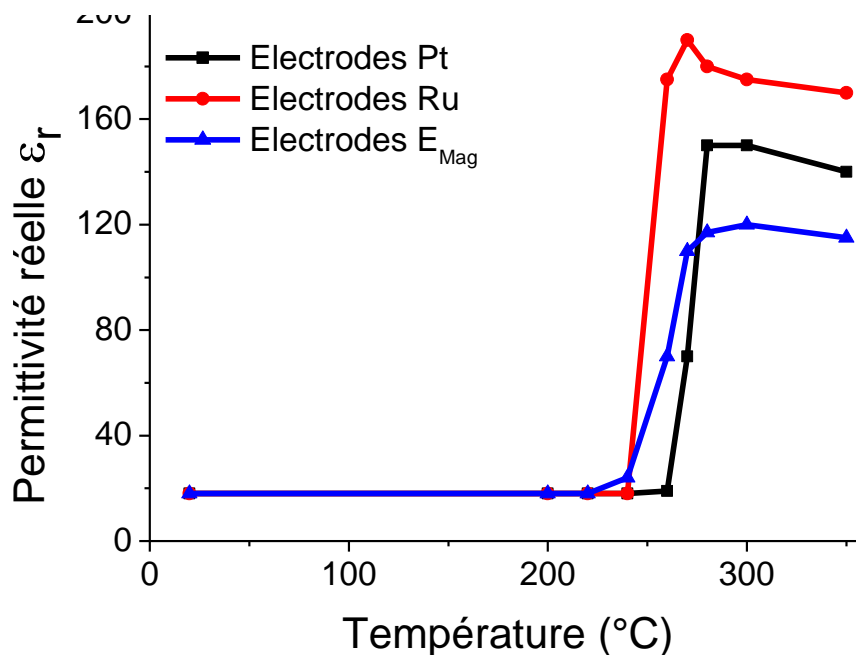


Figure 12 : Température de cristallisation de STO en fonction de la température et de la nature de l'électrode (E1, E2, E4). Les mesures sont faites à 100 kHz.

Les principaux résultats de cette étude sont synthétisés sur la figure 12. A cette fréquence, le cas avec électrodes de Ru présente une permittivité plus élevée que dans les deux autres cas ( $\epsilon \sim 160$ ), ainsi qu'une température de cristallisation plus basse ( $T_c \sim 250^\circ\text{C}$ ). Le changement entre état amorphe et cristallisé est très abrupt et s'opère dans une gamme de 20°C. Dans le cas des électrodes magnétiques  $E_{\text{Mag}}$  qui comprennent une sous couche de 5 nm de Ru, on évalue une cristallisation à 260°C et une permittivité de 100.

Le fait d'utiliser des électrodes à base de Ru semble donc plus favorable à la cristallisation de STO déposé par IBS. La raison n'est pas connue, et peut être liée à la structure et texture de Ru, ou du fait de la faible rugosité de l'interface, par exemple.



Néanmoins, c'est ici un résultat marquant et qui de plus est une bonne nouvelle concernant notre électrode magnétique, Ru en étant l'élément de sous couche et de capping.

En conclusion, nous avons ici montré qu'il est possible de cristalliser du SrTiO<sub>3</sub> à basse température (< 280°C), de constante diélectrique élevée ( $\epsilon_r \sim 100$ ) avec des électrodes de platine, mais aussi des électrodes de ruthénium, et des électrodes magnétiques ayant du Ru aux interfaces. Bien sûr, des questions restent en suspens, comme l'origine fine de cette cristallisation, la dépendance de la température de cristallisation et de la valeur de permittivité en fonction de l'épaisseur de STO, la présence de lacunes d'oxygènes pouvant être exacerbées par des recuits sous vide... De plus, bien que la permittivité soit souvent supposée isotrope, elle a généralement, surtout en couches minces, un caractère anisotrope, ce qui n'a pas été étudié ici. En effet, nous mesurons par le biais des capacités MIM la composante perpendiculaire au plan des couches. Pour les composantes dans le plan des couches, il faudrait utiliser des mesures par capacités interdigitées, technologie à laquelle nous n'avons pas eu accès. Toutefois, ces résultats sont concluants et les images TEM révèlent une très grande cristallinité ici. On peut donc envisager la réalisation d'une hétérostructure magnéto-diélectrique à forte perméabilité et forte permittivité, que nous allons détailler dans la partie suivante, d'autant plus que le ruthénium est très favorable à la cristallisation de STO.

#### IV) Matériau magnéto-diélectrique

Nous divisons cette partie en deux : une première qui concerne la structure magnéto-diélectrique réalisée en PVD (STO non cristallisé) puis la même structure réalisée cette fois ci par un mixte IBS-PVD ( $\epsilon$ - $\mu$ ). Malheureusement, la troisième partie « tout IBS » ne pourra être présentée en raison d'un accès machine insuffisant pour développer complètement l'empilement, les matériaux magnétiques n'étant pas stabilisés dans les bâtis de dépôts IBS à notre disposition.

##### 4.1) Structure « Tout PVD »

Le STO PVD est déposé amorphe et cristallise à 550°C. Sa rugosité après dépôt (ou recuit à 300°C) est mesurée par AFM. Elle est très faible, proche de celle de la silice : 0.18 Å. Il n'est alors pas étonnant que les propriétés magnétiques de l'empilement ne soient pas modifiées, tant au niveau dynamique que statique. Le dépôt au dessus de l'empilement n'a pas d'effet non plus. On peut voir figure 13 un exemple du spectre de perméabilité, en tout point semblable à celui présenté dans ce chapitre, figure 5.b, et de structure :

$$\text{STO}^{\text{PVD}} (50\text{nm}) / E_{\text{Mag}} (90 \text{ nm}) / \text{STO}^{\text{PVD}} (50\text{nm})$$

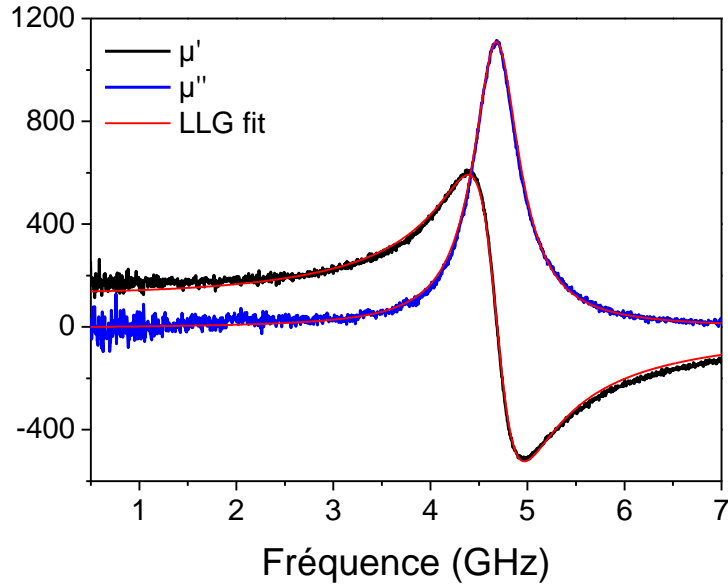
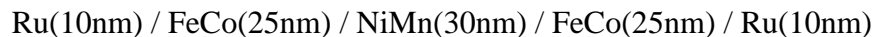


Figure 12 : Spectre de perméabilité d'un empilement magnéto-diélectrique tout PVD.

#### 4.2) Structure « Mixte » PVD-IBS

A présent, intéressons nous à la structure magnéto-diélectrique « mixte » où  $E_{Mag}$  est déposée par PVD et le STO est déposé par IBS. Précisons que  $E_{Mag}$  est légèrement modifiée :



La raison de l'augmentation de l'épaisseur des couches de Ru de 5 nm à 10 nm provient du constat d'une cristallisation basse température du STO aléatoire. La raison de ce problème n'a pas été identifiée clairement, mais il est finalement apparu qu'augmenter l'épaisseur de Ru de 5 à 10 nm le résolvait.

##### a) Mesures XRD

Les mesures XRD montrent clairement l'apparition des raies principales de diffraction du STO cristallisé, correspondants à  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 200 \rangle$  et  $\langle 211 \rangle$  (figure 14.a). On notera aussi la présence des pic principaux de diffraction de  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  et de NiMn correspondant respectivement à  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ .

La figure 14.b compare les trois raies principales de STO (le bruit de fond a été soustrait) des échantillons E6 (Pt), E7 (Ru) et E8 ( $E_{Mag}$ ). On observe bien que ces trois pics sont identiques, le processus de cristallisation semble donc le même pour ces trois électrodes. De plus, à partir de la largeur de raie à mi-hauteur ( $\Delta\theta$ ), on peut estimer la taille de grains moyenne dans l'épaisseur à l'aide de la formule de Scherrer [21] :

$$D = \frac{0.9\lambda}{\Delta\theta \cos\theta}$$

où  $D$  est le diamètre des grains,  $\lambda$  la longueur d'onde du faisceau incident (ici la raie  $K_{\alpha}$  du cuivre à  $\sim 1.54 \text{ \AA}$ ) et  $\theta$  l'angle d'incidence des rayons X par rapport à la surface de l'échantillon.

On estime la taille de grains (valeurs indicatives) de ce STO aux alentours de  $D = 35 \text{ nm}$  pour E6, E7 et E8. Pour FeCo, on trouve une valeur cohérente,  $D = 22 \text{ nm}$ , de l'ordre de son épaisseur, comme visible sur l'image TEM (figure 15). Notons ici que pour le dépôt STO<sup>PVD</sup> on estime  $D = 24 \text{ nm}$ , ce qui est significativement différent de celle de STO<sup>IBS</sup>. Cela peut être dû à la technique de dépôt, à la différence d'épaisseur (50nm vs. 80 nm) ou au fait que STO<sup>IBS</sup> soit confiné par des électrodes.

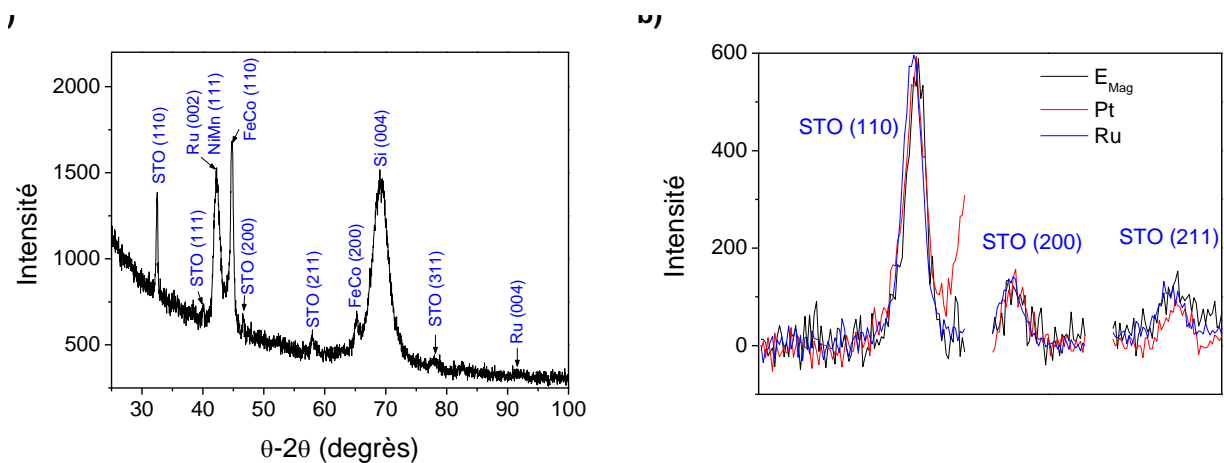


Figure 14 : Diffraction X : a) Echantillon (E8), b) Comparaison de principaux pics de diffraction pour E6, E7 et E8.

Une étude complémentaire a été menée afin d'étudier la présence ou non de lacunes d'oxygène dans le STO. Ces études se font à travers le paramètre de maille  $a$ . Les résultats indiquent une augmentation de  $a$  en comparaison à la valeur du massif. Deux hypothèses sont à retenir :

- les électrodes ont diffusé dans le STO
- le calcul du paramètre de maille est déterminé à partir de mesures de contrainte. Ces contraintes sont supposées dans le plan de la couche (tension, compression). Or, si l'on est en présence d'une croissance de grains dans une matrice amorphe, il faut alors tenir compte d'une contribution des contraintes hors du plan, sinon, on surestime  $a$ . Cela conforterait alors l'hypothèse d'une croissance de grains dans une matrice amorphe.

### b) Observations TEM

La figure 15 illustre un des points marquant de cette thèse : la coupe TEM de l'hétérostructure magnéto-diélectrique à forte perméabilité et forte permittivité (E8). On y observe bien chaque couche individualisée cristallisée :

- les grains de FeCo et de NiMn sont colonnaires et font plus ou moins l'épaisseur de la couche. Ces couches sont légèrement rugueuses. On notera ici l'effet avantageux du Ru qui « mouille » bien et permet de conserver des interfaces bien définies.

- le STO est également cristallisé, de manière semblable aux électrodes Pt et Ru (figure 9 et 11). On remarquera aussi que la deuxième interface de STO est rugueuse (mais « lissée » par le Ru).

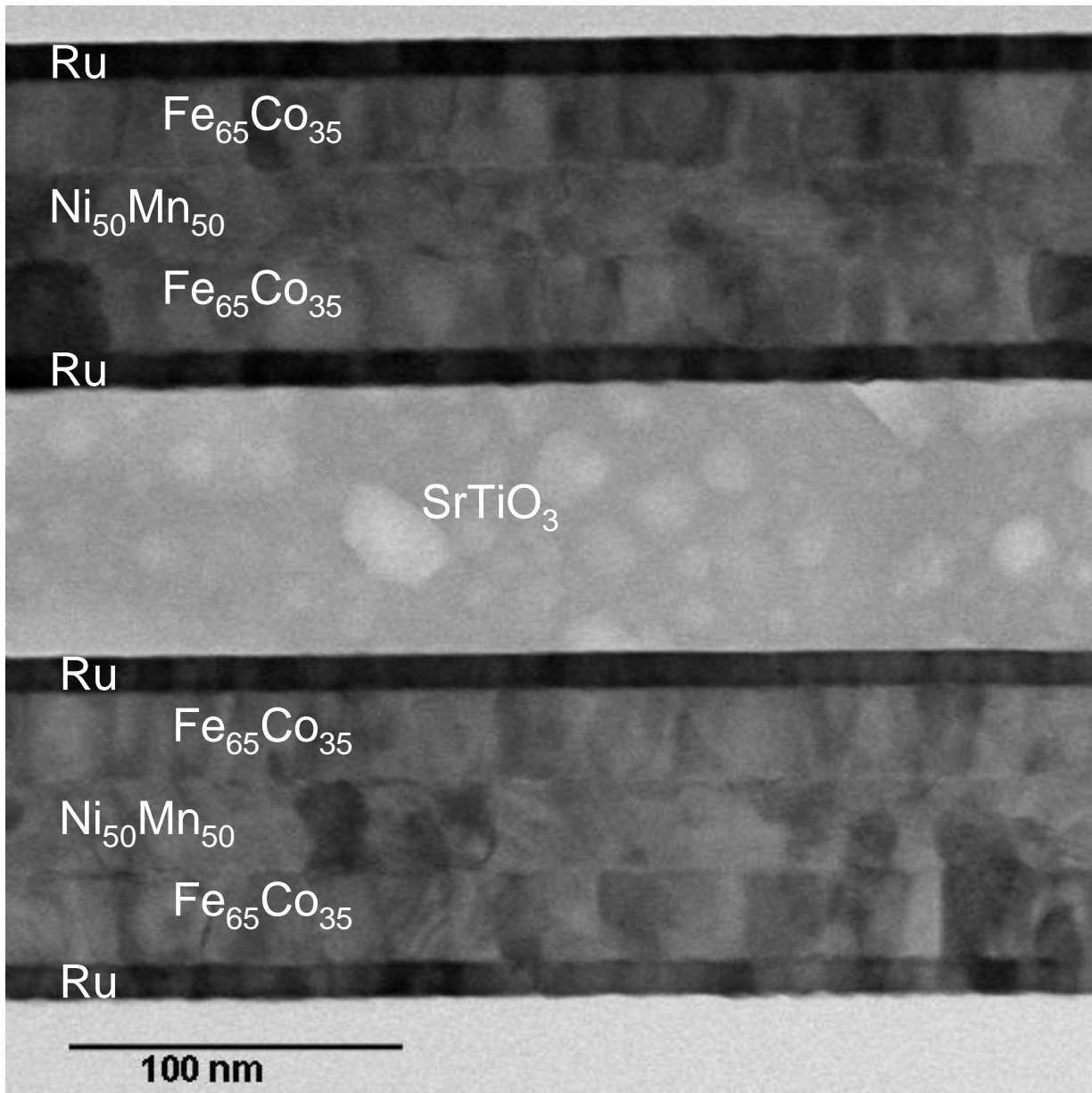


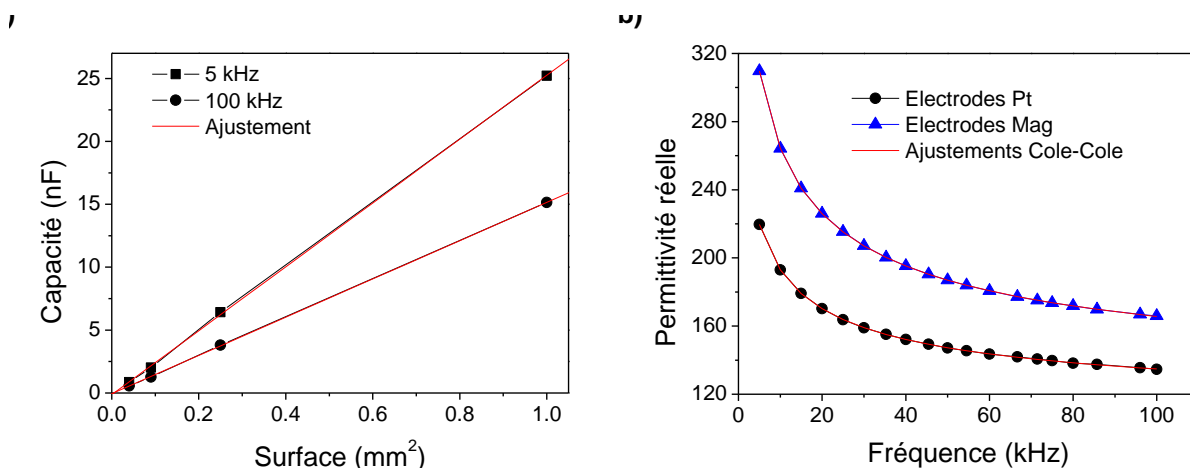
Figure 15 : Coupe TEM de l'empilement final  $E_{Mag}/STO/E_{Mag}$  (E8).

### c) Mesures de permittivité

Nous avons présenté en partie III.3.4 des mesures de permittivité basse fréquence qui, nous le disions, sont tronquées par des effets de relaxations dus à des mouvements de charges interfaciaux. Ces effets sont nettement visibles figure 16.b, avec par exemple le cas Pt où on passe de  $\epsilon(5 \text{ kHz}) = 310$  à  $\epsilon(100 \text{ kHz}) = 160$ . Des méthodes d'analyses basées sur un ajustement Cole-Cole ont été développées afin d'extrapoler la permittivité à plus haute fréquence et ainsi s'affranchir de ces phénomènes de relaxation (cf. II.5.3). On supposera que les valeurs obtenues à l'infini (loin de la relaxation) seront des valeurs plausibles dans le

régime micro-onde puisque plusieurs études ont montré que le STO en couches minces est peu dispersif en hyperfréquence [22, 23, 24]. Les résultats sont présentés pour les échantillons E6 (Pt, référence) et E8 ( $E_{Mag}$ ).

Rappelons tout d'abord la procédure qui va nous permettre d'obtenir les valeurs de permittivité extrapolée au régime micro-onde : nous mesurons la capacité et la conductance de nos échantillons en fonction de la fréquence (5 -> 100 kHz) et de la surface des capacités MIM. Afin de supprimer les effets de bords, nous ajustons la capacité en fonction de la surface en chaque point de fréquence. Cette dépendance surfacique est linéaire, et la pente est proportionnelle à la permittivité intrinsèque du diélectrique mesuré (figure 16.a). Nous obtenons donc une dépendance de la permittivité intrinsèque en fonction de la fréquence. Ainsi, nous pouvons effectuer un ajustement de type Cole-Cole de la permittivité (figure 16.b). Nous considérons donc que cette permittivité infinie extraite de l'ajustement sera notre permittivité hyperfréquence. Bien entendu, ces résultats ne sont qu'indicatifs ; l'idéal consisterait à faire des mesures hyperfréquences comme par exemple les mesures de résonance LC de capacité MIM [22]. Mais nous obtenons ainsi une bonne indication de la valeur potentielle de la constante diélectrique de notre STO cristallisé, d'autant plus que nos résultats se corrèlent bien à les résultats de la littérature sur ce même STO [22, 23].



**Figure 16 : a) Exemples de dépendance de la capacité en fonction de la surface à 5kHz et 100 kHz, b) Dépendance fréquentielle et ajustement de la permittivité intrinsèque de 77 nm de STO pour des électrodes magnétiques (E8) et des électrodes de platine (E6).**

L'extraction des mesures de permittivité donne une constante diélectrique à l'infini  $\epsilon_r = 103$ , pour le cas des électrodes Pt (E6) et de  $\epsilon_r = 104$  pour le cas des électrodes magnétiques (E8). Il semblerait donc que la nature des électrodes n'influence pas la valeur de la permittivité hyperfréquence. Ces valeurs identiques concordent bien avec les analyses XRD et TEM qui montrent des structures cristallographiques identiques dans les deux cas.

Les capacités ont aussi été mesurées avant recuit, et convergent dans les deux cas sur une permittivité de 15, caractéristique de l'état amorphe. Soulignons ici, que bien que cette valeur ne soit pas complètement surprenante, nous attendions plutôt 18 comme valeur de permittivité, ce qui avait été observé sur toutes les autres capacités MIM (E1-> E5).

#### d) Influence de la cristallisation de STO sur l'électrode magnétique

Nous venons de présenter la possibilité de cristalliser STO sur des électrodes magnétiques. Il serait intéressant d'observer les conséquences de cette cristallisation sur les propriétés magnétiques de  $E_{Mag}$ . Malheureusement, cette étude n'a pu être menée complètement à terme.

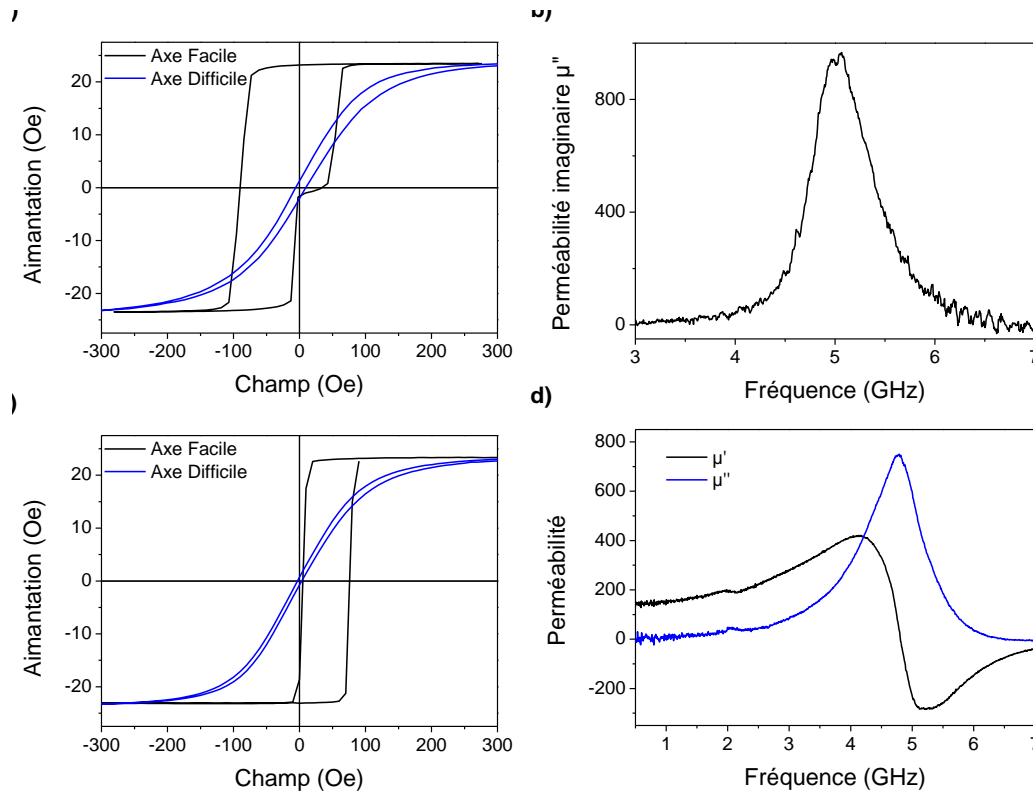


Figure 17 : a) Cycle d'hystérésis pour E4, c) Perméabilité pour E4, c) Cycle d'hystérésis pour E8, d) Perméabilité (dégradée) pour E8.

Sur des premiers échantillons ayant 5 nm de Ru aux interfaces (E4), nous avons constaté une forte influence de la cristallisation, avec généralement l'apparition d'un double coercitif sur l'axe facile, comme montré figure 17.a. L'axe difficile semble moins fermé, mais cela peut être aussi attribué à un artefact de mesure (par exemple si l'axe difficile est mal aligné avec le champ magnétique statique). La conséquence n'est pas dramatique d'un point de vue dynamique (figure 17.b), avec une augmentation modérée de la largeur de raie à mi-hauteur ( $\Delta f \sim 0.7$  GHz). Toutefois cette augmentation pourrait aussi être due à l'existence de deux fréquences de résonances. En effet, d'une part le champ d'échange est sûrement sensiblement différent pour chaque électrode, et cela est corrélé par un petit doublet sur  $\mu''$  (fig. 17.b). Cette augmentation du coercitif n'a pas été investiguée, mais il est plausible que le STO ait transmis une texture  $\langle 110 \rangle$  au FeCo. Or, nous l'avons précisé auparavant, pour des systèmes bcc, une texture  $\langle 111 \rangle$  tend à diminuer le champ coercitif alors qu'une texture  $\langle 110 \rangle$  tend à l'augmenter [6].

En revanche, pour l'échantillon E8, avec 10 nm de Ru aux interfaces, les cycles statiques (axes facile et difficiles) présentent des propriétés identiques à celle de l'électrode seule (figure 17.c). Toutefois, les mesures dynamiques montrent une dégradation de la réponse qui semble liée à l'apparition de courants de Foucault en raison du cumul d'épaisseur ici plus défavorable (figure 17d).

**e) Multi-alternances [F/AF/F/D]\*n**

A terme, afin d'améliorer l'efficacité, il faudra multiplier le nombre d'alternances de l'hétérostructure. On bénéficiera avantageusement, théoriquement, de l'effet de lamination procuré par STO, qui brisera les courants de Foucault. Ici, les résultats présentés concernent :

$$[E_{Mag}/STO^{PVD}] * N, \text{ avec } N=1, 2, 3, 5$$

D'un point de vue statique, tous les échantillons présentent le même cycle d'hystérésis, en axes facile et difficile, signe que les interfaces, et les dépôts d'une manière générale, sont de très bonne qualité. Par contre, lorsque l'on s'intéresse aux propriétés dynamiques, une forte dégradation de la perméabilité est constatée (figure 18) : en augmentant le nombre d'alternances de N = 1 à N = 5, des pertes importantes apparaissent. L'allure des courbes fait penser à des phénomènes liés aux courants de Foucault, ce qui serait surprenant du fait des laminations par le STO. On retiendra une hypothèse qui peut être à l'origine de ces pertes en excès : des courts circuits par les bords de l'échantillon dus à leur découpe.

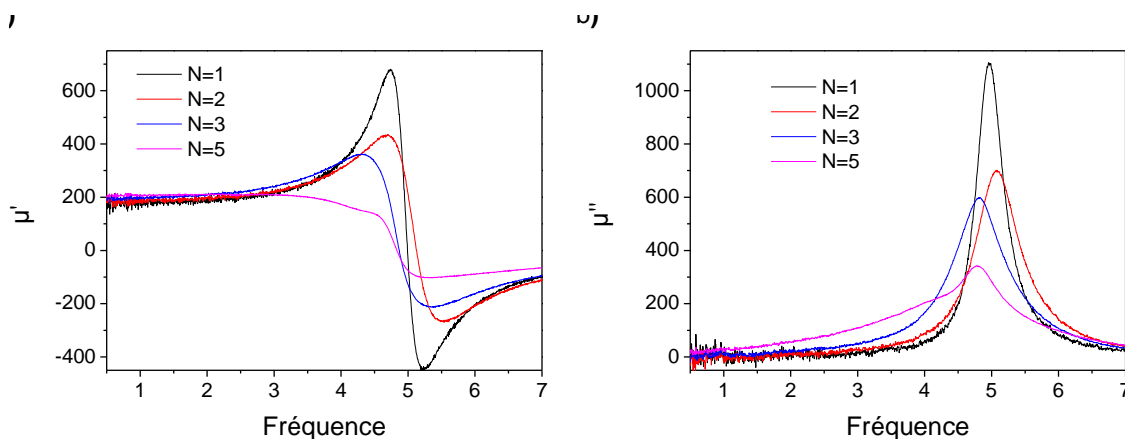


Figure 18 : Parties réelle (a) et imaginaire (b) de la perméabilité en fonction du nombre d'alternance (N = 1 -> 5).

## V) Conclusion

Pour conclure, nous venons de présenter la possibilité de créer une hétérostructure magnéto-diélectrique en couche mince combinant de la forte perméabilité et de la forte permittivité. Elle présente des propriétés exceptionnelles pour les applications micro-ondes :

$f_r (H=0)$	$\Delta f$	$\mu_{dc}$	$\epsilon_r$
5 GHz	0.48 GHz	180	100

L'électrode magnétique a un comportement « dur » suivant l'axe de piégeage ; l'état rémanent de l'aimantation est totalement saturé et nous le qualifions d'état « auto-polarisé » par analogie aux ferrites. De plus, cette polarisation, et par conséquent la fréquence de résonance de cette électrode, est ajustable suivant l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Suivant l'axe difficile, le comportement est qualifié de « doux », car la rotation de l'aimantation est cohérente, donc la perméabilité se rapproche de la description macrospin et du modèle LLG et les pertes sont ainsi très faibles. Le verrou que lève cette étude est donc la possibilité de cristalliser le composé  $\text{SrTiO}_3$  à une température très modérée ( $T_c \sim 250^\circ\text{C}$ ), mais garantissant une constante diélectrique élevée ( $\epsilon_r \sim 100$ ), et compatible avec des électrodes magnétiques.

Nous avons donc ici une brique de base, mais qui reste à étudier plus en détail. Nous avons montré que le STO est très fortement cristallin, mais semble poreux. Est-ce dû à des lacunes d'oxygènes, à la technique de dépôt ? D'autres questions restent aussi à être élucidées : comment varie la température de cristallisation et la valeur de permittivité en fonction de l'épaisseur de STO ? Quelle est l'importance de la couche Ru à l'interface ? Ou alors est-il possible de cristalliser la couche de STO directement sur FeCo ? Ces questions feront l'objet d'études ultérieures à cette thèse.

Néanmoins, il semble dès à présent intéressant de tester ce matériau avec des structures résonantes et rayonnantes, ce qui permettrait d'observer ses effets sur la propagation d'une onde, l'objectif étant de réduire la taille et de fonctionnaliser ces dispositifs.



## Références

- [1] Julie Guillan, « *Etude de capacités en couches minces à base d'oxydes métalliques à très forte constante diélectrique, BaTiO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub> et SrTiO<sub>3</sub>/BaTiO<sub>3</sub> déposées par pulvérisation par faisceau d'ions* », PhD thesis, Université Joseph Fourier de Grenoble (2005)
- [2] Yann Lamy, « *Matériaux magnétiques doux hétérogènes à combinaison d'aimantation élevée et de grande anisotropie utilisant le couplage d'échange, pour applications microondes* », PhD thesis, Université de Limoges (2006)
- [3] B. Viala, G. Visentin, and P. Gaud, “*AF-biased CoFe multilayer films with FMR frequency at 5 GHz and beyond*”, IEEE Trans. Magn., Vol. 40, p. 1996 (2004)
- [4] Sandrine Couderc, « *Etude de matériaux ferromagnétiques doux à forte aimantation et à résistivité élevée pour les radio fréquences* », PhD thesis, Université de Limoges (2006)
- [5] Kasper J. S. and Kouvel J. S. “*The antiferromagnetic structure of NiMn*”. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 11 :231–238, 1959
- [6] Bernard Viala, « *Le ferromagnétisme pour les hyperfréquences* », Habilitation à Diriger les Recherches, Université Joseph Fourier de Grenoble (2008)
- [7] J. Noguès and I. K., Schuller “*Exchange bias*”, JMMM, Vol. 192, p. 203–232 (1999)
- [8] Tsann Lin, Daniele Mauri, Norbert Staud, Cherngye Hwang, and J. Kent Howard, “*Improved exchange coupling between ferromagnetic Ni-Fe and antiferromagnetic Ni-Mn-based films*”, Appl. Phys. Lett. Vol. 65, 1183 (1994)
- [9] J. P. Nozières, S. Jaren, Y. B. Zhang, A. Zeltser, K. Pentek, and V. S. Speriosu, “*Blocking temperature distribution and long-term stability of spin-valve structures with Mn-based antiferromagnets*”, J. Appl. Phys. Vol. 87, 3920 (2000)
- [10] R. Arias and D. L. Mills, “*Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultra thin films*”, Phys. Rev. B, Vol. 60, p.7395 (1999)
- [11] S. M. Rezende, A. Azevedo, M. A. Lucena and F. M. Aguiar, “*Anomalous spin-wave damping in exchange bias films*”, Phys. Rev. B., Vol. 63, p. 214418 (1994)
- [12] A.A. Sirenko, I.A. Akimov, C. Bernhard, A.M. Clark, J.H. Hao, W. Si, X.X. Xi, “*Lattice dynamical properties of SrTiO thin films*”, AIP Conference Proceedings, Vol. 35, p. 201-217 (2000)
- [13] K.A. Müller, H. Burkard, “*SrTiO<sub>3</sub>: An intrinsic quantum paraelectric below 4 K*”, Phys. Rev. B, Vol. 19, p. 3593-3602 (1979)
- [14] J.G. Bednorz, K.A. Müller, “*SrCaTiO: An XY quantum ferroelectric with transition randomness*”, Phys. Rev. Lett., Vol. 52, p. 2289-2292, (1984)
- [15] H. Uwe, T. Sakudo, “*Stress-induced ferroelectricity and soft phonon modes in SrTiO<sub>3</sub>*”, Phys. Rev. B, Vol. 13, p271-286 (1976)
- [16] F.W. Lytle, “*X-Ray diffractometry of low-temperature phase transformations in strontium titanate*”, J. Appl. Phys., Vol. 35, p. 2212-2215 (1964)
- [17] M.E. Lines, A.M. Glass, “*Principles and application of ferroelectrics and related materials*”, Clarendon Press, Oxford (1977)

- [18] L.J. Sinnamon, R.M. Bowman, J.M. Gregg, “*Investigation of dead-layer thickness in SrRuO<sub>3</sub>/Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub>/Au thin-film capacitors*”, Appl. Phys. Lett., Vol. 78, p. 1724-1726 (2001)
- [19] K. Natori, D. Otani, N. Sano, “*Thickness dependence of the effective dielectric constant in a thin film capacitor*”, Appl. Phys. Lett., Vol. 73, p632-634 (1998)
- [20] R. Waser, “*Dielectric analysis of integrated ceramic thin film capacitors*”, Integrated Ferroelectrics, Vol. 15, p. 39-51 (1997)
- [21] A. L. Patterson, “*The Scherrer Formula for X-Ray Particle Size Determination*”, Phys. Rev., Vol. 56, p. 978–982, (1939)
- [22] E. Defay, F. Blanchet, C. Billard, C. Fort, J.B. David, L. Lombard and L. Galera, “*Integrated MIM perovskite capacitors for RF applications*”, Integrated Ferroelectrics, Vol. 66, p. 231-242 (2004)
- [23] T. Lacrovez, B. Fléchet, A. Farcy, J. Torres, M. Gros-Jean, C. Bermond, T.T. Vo, O. Cueto, B. Blampey, G. Angénieux, J. Piquet and F. de Crécy, “*Wide band frequency and in situ characterisation of high permittivity insulators (High-K) for H.F. integrated passive*”, Microelectronic Engineering, Vol. 83, p. 2184-2188 (2006)
- [24] T. Tsurami et al, «*Wide range dielectric spectroscopy of SrTiO<sub>3</sub>-SrZrO<sub>3</sub> solid solution*», Journal of the Ceramic Society of Japan, Vol. 114, p. 774-781, 2006

# **Chapitre IV : Intégration à des dispositifs hyperfréquences**

<b>I) Objets résonants</b>	<b>130</b>
1.1) Lignes coplanaires à résonance demi onde	130
a) Description des CPW étudiées	130
b) Paramètres clés de l'étude	131
c) « Empilement simple »	132
d) « Empilement double »	135
1.2) Simulation de lignes coplanaires à résonance demi-onde à 3 GHz	136
a) Simulations par EMXD	137
b) Simulations par HFSS	139
c) Simulations analytiques	141
1.3) Lignes coplanaires non résonantes	141
a) Description des CPW non résonantes	142
b) Résultats	143
1.4) Conclusion	145
<b>II) Objets rayonnants</b>	<b>146</b>
2.1) Antennes : les points clés	147
2.2) L'antenne dipolaire	148
2.3) L'antenne patch	150
2.4) Conclusion	152
<b>Références</b>	<b>152</b>

Nous avons présenté dans le chapitre précédent les propriétés de l'hétérostructure magnéto-diélectrique développée dans le cadre de cette thèse. Nous allons à présent nous intéresser à l'interaction de ce matériau avec des objets possédant une résonance dimensionnelle, les lignes coplanaires, puis avec des objets rayonnants, les antennes. Nous chercherons déterminer son potentiel à miniaturiser et à fonctionnaliser ce type de dispositifs.

## I) Objets résonants

L'objet le plus simple à réaliser, le plus immédiat et certainement le plus approprié à l'observation de l'effet de l'hétérostructure magnéto-diélectrique (que nous nommerons aussi **MD**) sur la propagation d'une onde est le guide d'onde coplanaire (CPW). Ce dernier interagit fortement avec les couches minces et a une propagation quasi TEM, ce qui facilite l'interprétation des résultats. De plus, lorsqu'elles sont suffisamment longues, les lignes CPW sont le siège de résonances dimensionnelles facilement observables ; l'onde est alors « piégée » - ou encore dite stationnaire - et on peut se servir de ce type de dispositif comme préalable aux applications de filtrage (résonateur demi onde) ou d'adaptation d'impédance (résonateur quart d'onde). Or, les milieux magnéto-diélectriques ont le pouvoir de « compresser » l'onde éclairant le système ( $\lambda_0$ ) – ou de la ralentir - et donc de miniaturiser ce type d'objets. Ils ont aussi la capacité d'adapter l'impédance caractéristique du système, à condition que le rapport entre perméabilité et permittivité soit ajustable :

$$\lambda_{\text{dispositif}} = \frac{\lambda_0}{\sqrt{\mu_{\text{eff}} \epsilon_{\text{eff}}}} \quad (\text{Eq. 1})$$

$$Z_c = Z_0 \sqrt{\frac{\mu_{\text{eff}}}{\epsilon_{\text{eff}}}} \quad (\text{Eq. 2})$$

On voit bien à travers ces deux équations que l'apport d'un milieu à très fortes perméabilité et permittivité autorise théoriquement une importante réduction de la longueur de l'onde au sein du dispositif ( $\lambda_{\text{dispositif}}$ ), ainsi que l'adaptation de  $Z_c$ . A titre d'exemple, une onde se couplant totalement au milieu, avec  $\mu = \epsilon = 100$  réduirait d'un facteur 100 la longueur de l'objet, ce qui est considérable, et permettrait ainsi l'intégration de technologie typiquement microondes sur silicium. En effet, pour l'instant, ces dernières souffrent de leurs trop grandes dimensions : typiquement, un résonateur demi-onde à 2 GHz (fréquence typique des télécoms) mesure environ 4 cm, ce qui est bien sûr trop encombrant pour être intégré.

### 1.1) Lignes coplanaires à résonance demi onde

#### a) *Description des CPW étudiées*

Les tous premiers dispositifs que nous avons donc mis en oeuvre sont des jeux de lignes coplanaires de 2 et 3 cm de long. Afin de pouvoir réaliser ces objets dans un délai de temps raisonnable, nous avons opté pour l'option la plus simple, à minima d'étapes technologiques :

- Dépôt de l'empilement à étudier sur silicium haute résistivité préalablement oxydé. Nous serons donc en configuration « Bottom » (matériau MD sous la métallisation)
- Dépôt de la métallisation (1  $\mu\text{m}$  d'or)
- Lithographie UV
- Gravure humide de l'or
- Gravure IBE de l'empilement

Le recuit peut être fait avant ou après ces étapes, bien qu'un recuit postérieur permette de s'assurer de la bonne directivité du piégeage AF, certains procédés chauffant et pouvant partiellement débloquent l'AF.

Le masque comporte 7 motifs CPW (figure 1.a) : 4 lignes de 2 cm, 2 lignes de 3 cm alignées suivant le champ de piégeage AF et une ligne de 2 cm perpendiculaire au champ de recuit, afin de n'observer que l'effet du STO puisque ici  $\mu = 1$ . Pour chacune, le conducteur central à une largeur de 100  $\mu\text{m}$ , de 50  $\mu\text{m}$  pour les gaps et de 5 mm pour les plans de masse. Les plots d'accès font 100  $\mu\text{m}$  de coté, mais ne seront pas de-embedés ici. L'empilement magnéto-diélectrique se trouve sous la métallisation, mais aussi sous les plans de masse (figure 1.b) du fait du procédé simplifié de fabrication.

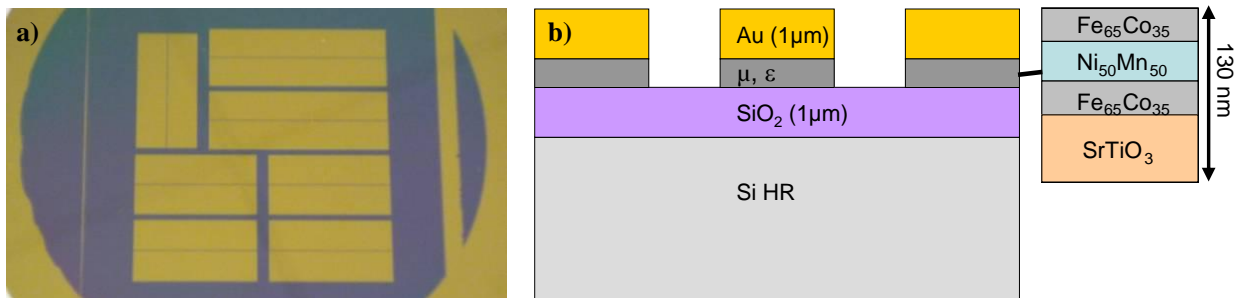


Figure 1 : Photo d'un jeu de CPW étudiées (a) et schématique de la coupe (b).

### b) Paramètres clés de l'étude

Nous nous intéresserons principalement à un paramètre clé pour l'étude : la constante de propagation de l'onde  $\gamma$ . Elle comporte une partie réelle – l'atténuation  $\alpha$  – qui représente les pertes, et une partie imaginaire – la constante de phase  $\beta$  – qui représente la vitesse de l'onde. Le matériau recouvrant entièrement la ligne et la propagation étant quasi-TEM, il est donc facile d'extraire  $\gamma$  à partir des paramètres S (cf. II.1.3).

$$\gamma_{\text{dispositif}} = \frac{2\pi f}{c} \sqrt{\mu_{\text{eff}} \varepsilon_{\text{eff}}} = \alpha + i\beta \quad (\text{Eq. 3})$$

Lors de la résonance dimensionnelle, la constante de phase a fait « un tour » (soit  $2\pi$ ). Généralement, on « déroule » la phase, pour des raisons de calcul, mais aussi physiques. Pourtant, une image utile pour visualiser la fréquence de résonance dimensionnelle est de garder la phase non déroulée, comme montré figure 2.a. Ainsi, en comparant la fréquence de résonance d'une ligne à vide à celle d'une ligne chargée, nous pourrions quantifier la

contribution de MD à la compression de l'onde. Nous nommerons ce décalage potentiel de miniaturisation (PM%). Il est calculé au niveau du saut de phase de  $\beta$  de la manière suivante :

$$PM \% = \frac{f_{\lambda/2}^{air} - f_{\lambda/2}^{matériau}}{f_{\lambda/2}^{air}} * 100 \quad (\text{Eq. 4})$$

Toutefois, en simulation, le nombre de points peut être insuffisant pour définir correctement le saut de phase. Ou bien encore, la CPW est trop petite pour posséder une résonance dimensionnelle inférieure à la fréquence de résonance magnétique (on veut travailler en régime faibles pertes), mais on désire en extrapoler ce potentiel de miniaturisation. Dans ce cas, nous définissons PM% par un ajustement linéaire de  $\beta$  entre 0 et 2 GHz, gamme où  $\mu$  reste relativement constant. Puisque la pente de  $\beta$  est proportionnelle à la racine carrée du produit  $\mu_{eff} * \epsilon_{eff}$ , une augmentation de la pente de  $\beta$  sera également représentative du potentiel de miniaturisation. On définira alors PM % comme :

$$PM (\%) = \frac{\frac{\Delta\beta}{\Delta f} - \frac{\Delta\beta_{air}}{\Delta f}}{\frac{\Delta\beta_{air}}{\Delta f}} * 100 \quad (\text{Eq. 5})$$

Nous avons vérifié la cohérence de cette deuxième définition. La différence entre les deux méthodes est de 1 %. Par contre, si on excède l'intervalle de 0-2 GHz, par exemple en ajustant jusque 3 GHz, l'erreur peut devenir très importante (~ 100 %) car la dépendance de  $\beta$  à la fréquence n'est pas linéaire au voisinage de la fréquence de résonance ferromagnétique (5 GHz ici).

### c) « Empilement simple »

L'empilement concerné ici correspond à une version PVD avec :

$$\text{Ru(5nm)/ FeCo(25nm)/NiMn(30nm)/FeCo(25nm)/Ru(5nm) / STO (50nm)}$$

Les propriétés intrinsèques sont respectivement :  $\mu_{dc} = 180$ ,  $f_r = 5$  GHz et  $\Delta f = 480$  MHz pour la partie magnétique et  $\epsilon_r = 18$  pour la couche diélectrique (STO amorphe ici). Précisons que les valeurs magnétiques vont varier lorsque l'empilement sera intégré à la CPW du fait de la contribution supplémentaire des champs démagnétisants créés par la taille finie du ruban propageant le signal. Les lignes font 2 et 3 cm, soit des fréquences de résonance dimensionnelles de 3 et 2 GHz respectivement. Ceci permet de sonder le domaine faible perte avant la résonance ferromagnétique fixée ici à environs 5 GHz par le choix de l'empilement.

Les constantes de phase et d'atténuation pour trois configurations CPW (de 2 cm) sont représentées en figure 2, avec :

- CPW<sub>Air</sub> : la ligne est non chargée, elle sert de référence
- CPW<sub>MD</sub> : la ligne est chargée par la structure magnéto-diélectrique
- CPW<sub>90°</sub> : la ligne est chargée, mais orientée à 90° du recuit. On observe plus l'effet de  $\mu$

Le premier constat émanant de figure 2.a est que le matériau magnéto-diélectrique agit sur la propagation de manière significative, avec  $PM\% = 8.5\%$ . Sur la courbe référencée «  $CPW_{MD}$  », on voit nettement la résonance ferromagnétique à 5.6 GHz, en bon accord avec le calcul théorique (LLG) prenant en compte les champs démagnétisants. La perméabilité basse fréquence est estimée à  $\mu_{dc} = 150$ . L'observation de la courbe référencée «  $CPW_{90^\circ}$  » nous informe sur la ou les contributions non magnétiques, avec l'effet diélectrique également important :  $PM\% = 5.5\%$ .

L'observation de la seconde résonance dimensionnelle qui a lieu après la résonance ferromagnétique est tout aussi instructive. En effet, on remarque que c'est la ligne «  $CPW_{90^\circ}$  » qui résonne le plus bas. On s'attendrait pourtant à ce que la ligne «  $CPW_{MD}$  » soit au niveau du celle référencée «  $CPW_{90^\circ}$  », alors qu'au contraire on constate un rapprochement de la propagation de la ligne «  $CPW_{Air}$  ». Sur certaines lignes, on colle même parfaitement à cette propagation. Nous avançons l'hypothèse qu'un effet de bande interdite est provoqué par la perméabilité négative<sup>3</sup> ; l'onde ne se propage plus dans le matériau, mais seulement dans la partie air.

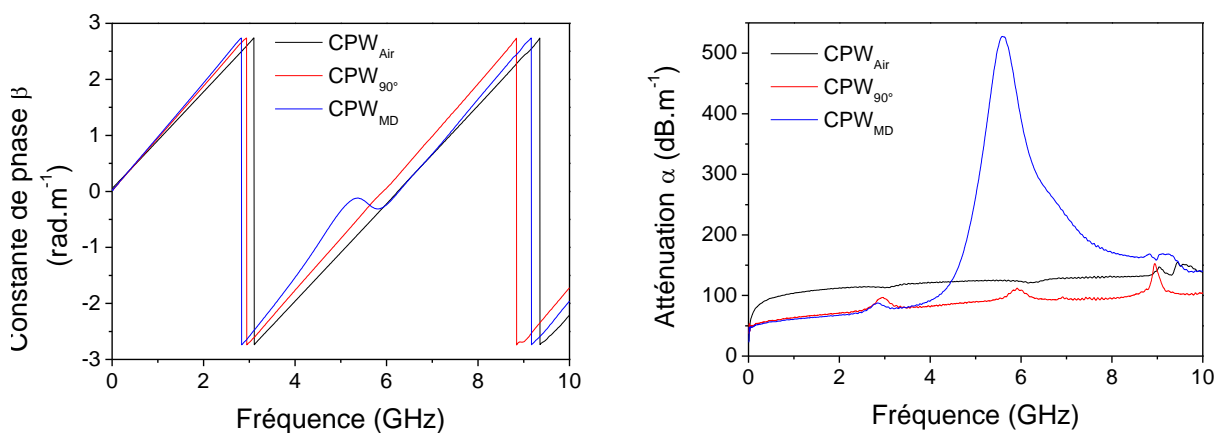


Figure 2 : Dépendance fréquentielle de la constante de phase  $\beta$  (a) et de l'atténuation  $\alpha$  (b) pour les configurations  $CPW_{Air}$ ,  $CPW_{MD}$  et  $CPW_{90^\circ}$ .

	PM%	$f_r$	$\mu_{dc}$	$\epsilon$	$\alpha$ (2 GHz)
$CPW_{MD}$	8.5 %	5.6 GHz	150	18	67 $\text{dB.m}^{-1}$
$CPW_{90^\circ}$	5.5 %	-	1	18	70 $\text{dB.m}^{-1}$

Tableau 1 : Résumé de l'interaction entre l'HMD et des CPW de 2 cm.

Sur les courbes d'atténuation  $\alpha$ , on observe avec satisfaction que les pertes magnétiques ont très peu d'impact sur l'atténuation jusqu'à environ 4 GHz (figure 2.b), ce qui est très proche de la FMR (5.5 GHz). Au delà, la dissipation augmente très fortement (pertes

<sup>3</sup> On se rappellera le diagramme  $\mu$ - $\epsilon$  de la partie introductive 2.3. Si l'une des deux grandeurs est négative, on est alors en régime de bande interdite.

multipliées par 10 à la FMR) ; cette région est intéressante pour le filtrage par absorption gyromagnétique (appellation « notch »), bien que les flancs ne soient pas très abrupts dans ce cas pour un filtre sélectif.

Si maintenant, l'on porte une attention plus particulière à l'atténuation, il paraît intrigant que celle de la ligne « CPW<sub>Air</sub> » soit plus élevée que celles des deux autres configurations, alors que nos matériaux sont censés apporter de pertes. L'explication la plus plausible est que le MD étant sous la métallisation, et en contact avec elle, il écrante une partie des pertes liées au substrat de silicium en canalisant ainsi l'onde plus fortement en elle, du fait des ses très fortes valeurs de permittivité et perméabilité.

Un autre point à remarquer est la présence de bosses sur l'atténuation, qui correspondent aux différentes résonances dimensionnelles ( $\lambda/2$ ,  $3\lambda/2$ ). Théoriquement, elles ne devraient pas être présentes et sont attribuées dans les publications à des divergences des paramètres S en ces points (les paramètres  $S_{ij}$  tendent vers 0 et les paramètres  $S_{ii}$  tendent vers l'infini) [1]. On constate ce même phénomène sur les courbes d'impédance caractéristique.

L'impédance caractéristique  $Z_c$  est plus complexe à analyser, comme le révèle la figure 3. De l'observation de sa partie réelle, on peut juger de la désadaptation introduite par le MD par rapport à la ligne de référence. On notera que celle-ci n'est pas exactement adaptée 50  $\Omega$ .

On relève que les lignes ne sont pas parfaitement adaptées avec une impédance  $Z_c$  comprise entre 55 et 57  $\Omega$  et que l'influence de la perméabilité est dominante en comparant les lignes « CPW<sub>90°</sub> » et « CPW<sub>MD</sub> », ce qui était attendu (Eq. 2).

Une dernière remarque concerne le comportement basse fréquence de la partie réelle de  $Z_c$ , figure 3.a, avec une nette remontée pour la ligne « CPW<sub>Air</sub> ». Cette divergence est principalement due aux pertes substrats – cela est bien mis en avant par le modèle de CPW développé par E. Bènevent [2]. On constate que ce phénomène n'est pas présent pour les deux autres configurations, ce qui confirme fortement l'hypothèse que le matériau concentre l'énergie de l'onde, écrantant par conséquent le substrat et réduisant sa contribution aux pertes.

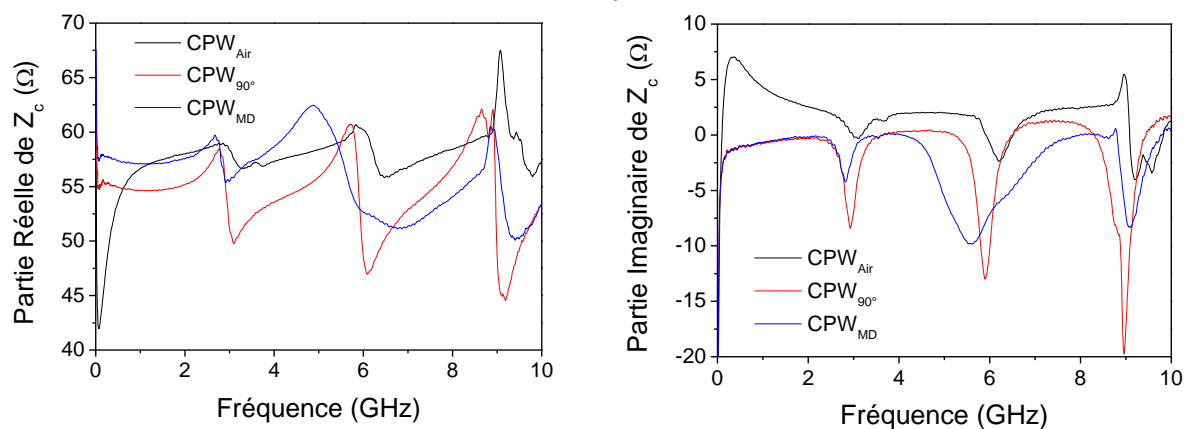


Figure 3 : Impédance caractéristique  $Z_c$  réelle (a) et imaginaire (b) en fonction de la fréquence pour les configurations CPW<sub>Air</sub>, CPW<sub>MD</sub> et CPW<sub>90°</sub>.



#### d) « Empilement double »

A présent, il est intéressant de voir la contribution d'un double empilement  $[\mu-\varepsilon]*2$  en comparaison du cas précédent. En effet, à terme, afin d'augmenter le couplage onde-matière, la structure de base devra être multipliée N fois. On profitera alors avantageusement de l'effet de lamination du STO afin de s'affranchir des courants de Foucault. Les résultats comparatifs entre une alternance (N=1) et deux alternances (N=2) sont présentés sur la figure 4.

Du fait de la double alternance, les champs démagnétisants sont modifiés en comparaison à N = 1, la FMR se trouve à présent 6.1 GHz, et  $\mu_{dc} = 130$ , ce qui complexifie la comparaison. En premier constat, le décalage de la fréquence de résonance dimensionnelle pour la ligne « CPW<sub>2\*MD</sub> » est plus important ici malgré la valeur de  $\mu_{dc}$  plus faible. On obtient PM% = 10.5%. D'autre part, l'effet cumulé de deux épaisseurs de STO (ligne « CPW<sub>2\*90°</sub> ») semble masqué car l'on passe seulement d'un potentiel de miniaturisation de 5% à PM% = 6%. Par contre, à la seconde résonance dimensionnelle, la constante de propagation de la ligne « CPW<sub>2\*MD</sub> » recolle à la celle de la ligne « CPW<sub>Air</sub> ». On suppose ici que l'effet de bande interdite est accentué.

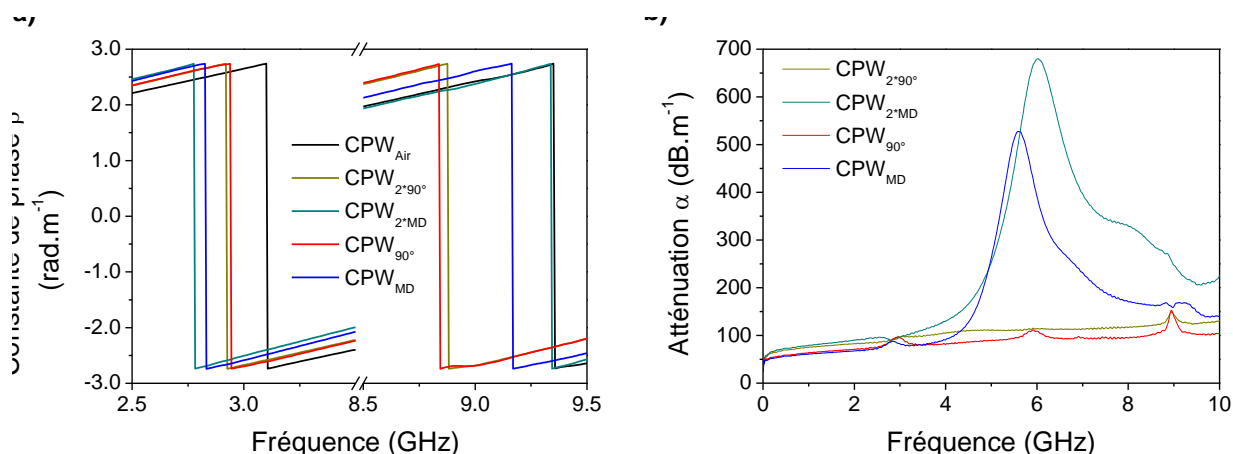


Figure 4 : Dépendance fréquentielle de la constante de phase  $\beta$  (a) et de l'atténuation  $\alpha$  (b) comparant un empilement simple (N=1) et un empilement double (N=2).

	PM%	$f_r$	$\mu_{dc}$	$\varepsilon$	$\alpha$ (2 GHz)
CPW <sub>MD</sub>	8.5 %	5.6 GHz	150	18	67 dB.m <sup>-1</sup>
CPW <sub>2*MD</sub>	10.5 %	6.1 GHz	130	18	90 dB.m <sup>-1</sup>
CPW <sub>90°</sub>	5.5 %	-	1	18	70 dB.m <sup>-1</sup>
CPW <sub>2*90°</sub>	6 %	-	1	18	82 dB.m <sup>-1</sup>

Tableau 2 : Résumé de l'interaction entre une et deux alternances de l'HMD et des CPW de 2 cm.

Sur l'atténuation, figure 4.b, on voit clairement le décalage de la FMR, ainsi qu'une augmentation significative des pertes à ce niveau. En comparaison à la structure N=1, les pertes sont augmentées d'environ 25 % dans la plage 0-3GHz. Hormis l'hypothèse d'artefacts technologiques, nous n'avons pas d'explications. Toutefois nous avons observé que la gravure

par faisceau d'ion (IBE) sur des empilements épais (ou multiples) engendrait le redépôt sur les flancs des échantillons d'un amalgame des éléments pulvérisés. Un élargissement de la raie de résonance ferromagnétique est souvent concomitant.

Afin d'analyser plus finement l'origine de l'écrantage des pertes substrat, nous avons étudié les paramètres RLCG des différentes lignes (les courbes ne sont pas montrées ici). Dans ce cas, les hypothèses retenues sont que cet écrantage est dû :

- au fait que l'on a un plan métallique sous le ruban central qui fait office de plan réflecteur.
- au fait que le MD concentre l'énergie en son sein

L'idéal pour l'analyse est de se concentrer sur la « CPW<sub>90°</sub> » et de la comparer à la ligne « CPW<sub>Air</sub> ». Si l'écrantage est dû à un plan métallique, dans ce cas l'inductance L augmentera (et ne sera pas influencée par  $\mu$ ). Au contraire, si c'est le matériau qui canalise l'onde, alors la capacitance C augmentera, et la conductance G baissera. L'analyse RLCG a fait apparaître clairement que l'inductance L est quasi identique pour les deux lignes comparées, alors que la C augmente et G baisse avec la présence de STO (CPW<sub>90°</sub>).

L'analyse de la conductance du cas de la ligne « CPW<sub>2\*90°</sub> » confirme qu'il y a certainement des petits courts circuits de redépôt lors de la gravure, puisque G augmente en comparaison à N=1 ; le ruban central est homogénéisé par les courts circuits et on perd une partie de l'effet diélectrique. Cela se retrouve également sur l'impédance caractéristique des cas N=2, où l'écroulement basse fréquence est présent sur toutes les lignes, bien que moins fortement que pour la ligne « CPW<sub>Air</sub> ».

Pour conclure cette partie, nous démontrons que l'hétérostructure magnéto-diélectrique agit bien sur la propagation de l'onde dans une ligne coplanaire, puisque avec seulement 50 nm de matière diélectrique et 50 nm de matière magnétique on « comprime » l'onde d'environ 8 %. On constate, bien que ne soit pas une surprise, que le silicium n'est pas le substrat le mieux adapté aux applications RF. Mais l'ajout du MD sous la CPW a un effet bénéfique surprenant qui se traduit par une diminution des pertes substrat. Enfin, on révèle ici les difficultés à venir pour l'utilisation d'un matériau plus épais à des fins d'augmentation de l'efficacité car une dégradation de la qualité de la réponse magnétique, et sûrement aussi diélectrique, semble systématique dès lors qu'il y a plusieurs alternances. Mais ceci pourrait être résolu par des améliorations de procédé, notamment concernant la gravure de l'empilement.

## **1.2) Simulation de lignes coplanaires à résonance demi-onde à 3 GHz**

Dans la partie précédente, nous avons présenté les résultats expérimentaux sur des lignes coplanaires à résonance demi-onde à 3 GHz. Cependant, n'avons pas pu inclure les effets du STO cristallisé car la série d'objets correspondants a souffert de problèmes de fabrication (délamination) et n'a pas pu être réitérée à temps. Nous allons donc anticiper ici des résultats par voie numérique. De plus, il existe d'autres topologies de lignes destinées à augmenter le couplage onde-matière qui nous ont fait défaut dans la partie précédente. Nous allons les explorer par voies numériques 2D ou 3D et analytique afin de nous aider à prévoir le

comportement d'une ligne CPW en présence d'une hétérostructure optimisée et cerner une solution efficace pour miniaturiser au maximum un dispositif résonant.

Pour toutes les simulations, nous partirons de l'empilement de type, avec les électrodes magnétiques réduites à l'épaisseur de la couche F, soit 50nm cumulés :

$$F (50\text{nm}) / \text{STO} (50\text{nm})$$

### a) Simulations par EMXD

EMXD est un logiciel développé au laboratoire XLIM, principalement par Michel Aubourg. Nous en utiliserons la version 2D. L'excitation n'est pas localisée, et tous les modes se propageant dans la ligne CPW (supposée infiniment longue) sont calculés. Bien qu'imparfait car « 2D », ce logiciel est extrêmement utile car il a un temps de calcul bien plus rapide qu'en « 3D », et est suffisamment prédictif pour pouvoir simuler des structures complexes consommant généralement trop de mémoire pour être utilisées (par exemple avec HFSS). Par contre, on n'extrait que la constante de propagation et pas l'impédance caractéristique.

Nous allons à présent brièvement décrire les résultats obtenus. Le maillage s'effectue manuellement avec le logiciel GMSH, ce qui permet de raffiner le nombre de nœuds dans les zones sensibles (arrêtes, épaisseur des couches minces...). Les conditions expérimentales sont recrées à l'identique grâce au paramétrage « matériaux » qui inclut la conductivité des couches ainsi que les caractères dispersifs s'ils sont présents. L'épaisseur de la métallisation de cuivre a été augmentée à 10  $\mu\text{m}$  (ce qui reste réaliste) afin de réduire les pertes d'insertion de la ligne.

Voici nos cas d'études simulés (figure 5) :

- CPW<sub>Air</sub> : Si / SiO<sub>2</sub> / Au (10 $\mu\text{m}$ )
- CPW<sub>N\*MD</sub> : Si / SiO<sub>2</sub> [/ F (50nm) / STO (50nm)]\*N / Au (10 $\mu\text{m}$ )
- CPW<sub>Sand</sub> : Si / SiO<sub>2</sub> / F (50nm) / STO (50nm) / Au (10 $\mu\text{m}$ ) / STO (50nm) / F (50nm)
- CPW<sub>Clo</sub> : c'est une version où le ruban conducteur est complètement encapsulé par le MD, comme schématisé figure 5.c

Ces deux dernières versions, CPW<sub>Sand</sub> et CPW<sub>Clo</sub> ont pour but de maximiser le couplage onde-matière en confinant le flux magnétique au mieux dans le matériau.

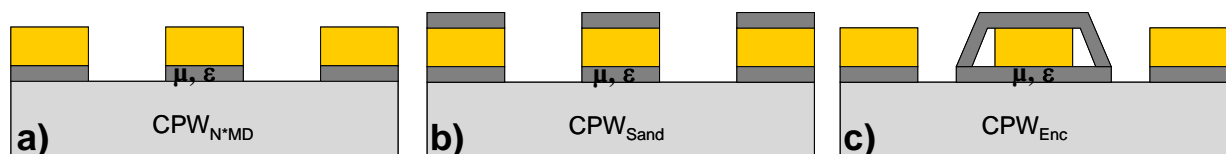


Figure 5 : Schématisation des CPW simulées.

Le premier constat, et qui sera identique avec HFSS, est que la simulation ne « voit » que très peu ou pas du tout les couches de STO, et à plus haute fréquence (15 GHz), en comparaison de l'expérience. Nous en ignorons l'origine. Le deuxième point concerne l'augmentation du nombre d'alternances N (figure 6), qui repousse comme attendu la fréquence de résonance magnétique, bien qu'elle soit ici légèrement surévaluée. La comparaison des résultats n'est

donc pas immédiate car la valeur de  $\mu_{dc}$  change. On constate aussi que la largeur de raie à mi-hauteur augmente avec N (de 10 à 100 %), ce qui pourrait à terme être un point pénalisant. Dans la mesure où les couches isolantes de STO semblent « transparentes » à la simulation, on peut penser que c'est l'accumulation de métal (couche F) qui en est responsable. Enfin, toujours dans les généralités, on note que les pertes restent modérées (voir négligeables) avant la résonance ferromagnétique et proches de celle de CPW<sub>Air</sub> jusqu'à presque 4 GHz.

Observons maintenant le potentiel de miniaturisation qui est calculé pour chaque structure et résumé table 3. Il y a logiquement une augmentation de PM% avec N, mais il apparaît clairement que CPW<sub>Sand</sub> et CPW<sub>Clo</sub> ont un potentiel de miniaturisation bien plus important, dès l'empilement unitaire (N=1). Cela est dû au fait que le flux magnétique est mieux confiné par le matériau autour du ruban central et le couplage onde-matière est bien plus important ici. Ces solutions « confinées » sont également plus intéressantes du point de vue des pertes et de la finesse de la largeur de raie à mi hauteur.

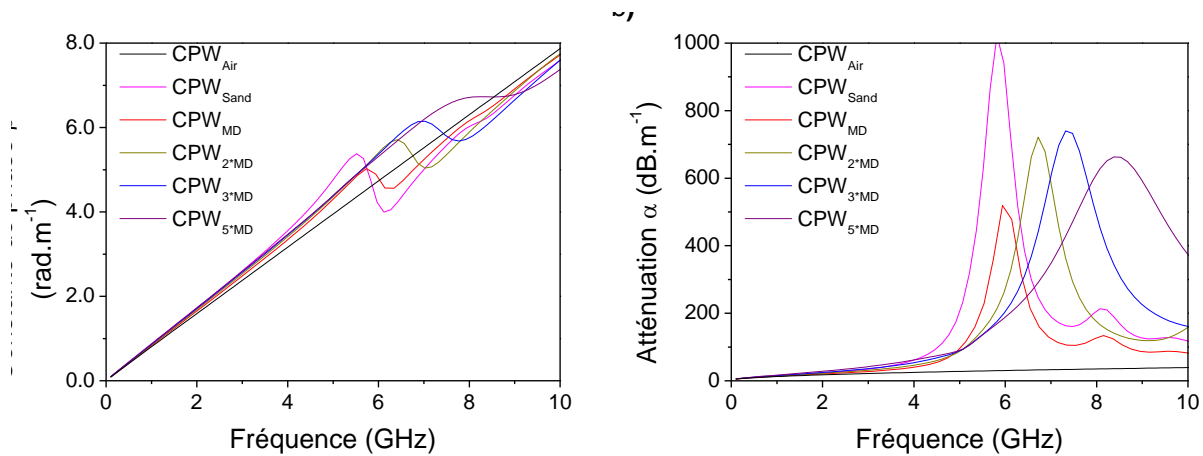


Figure 6 : Dépendance fréquentielle de la constante de phase  $\beta$  (a) et de l'atténuation  $\alpha$  (b) pour les différentes configurations CPW simulées par EMXD.

Alternances	Bottom				Sandwich	Encapsulé
	N=1	N=2	N=3	N=5	N=1	N=1
PM%	3.8 %	5.9 %	7.5 %	8.5 %	8.2 %	-> 250 %
$\mu_{dc}$	140	115	95	70	145	170

Tableau 3 : Résumé de l'interaction entre l'HMD et les différentes configurations CPW simulées par EMXD

Notons ici quelques éléments qui viennent modérer les résultats de la ligne encapsulée. Cette topologie devrait théoriquement confiner au maximum l'onde, mais le problème ici est qu'avec EMXD, l'excitation est non localisée. La simulation résout plusieurs modes, qu'il est possible de séparer partiellement, mais dont on ne sait pas à quoi ils correspondent (figure 7.a). Il est alors difficile d'être affirmatif quand à la validité de la simulation. Cependant, on peut supposer que la structure « Encapsulée » sera au moins aussi efficace que la version « Sandwich ». Si l'on superpose les propagations de ligne « CPW<sub>Sand</sub> » aux modes de la ligne « CPW<sub>Clo</sub> », on s'aperçoit que des modes sont plus lents et d'autres plus rapides, mais aucun ne se superpose à la propagation « CPW<sub>Sand</sub> ». Dans l'hypothèse où le mode principal de

propagation serait le plus élevé, on obtiendrait alors  $PM\% = 250\%$ , ce qui serait exceptionnel, mais ceci nécessite d'être confirmé.

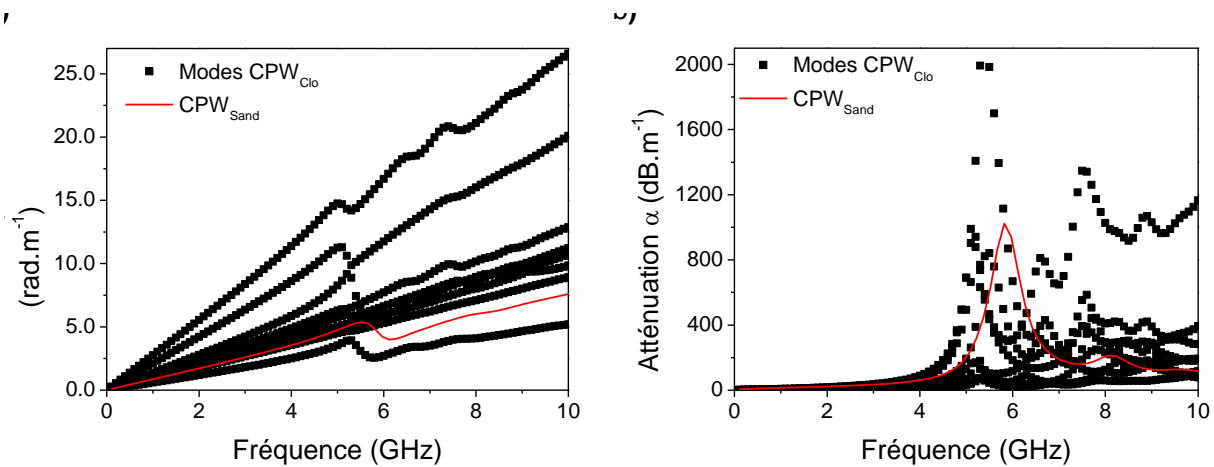


Figure 7 : a) Constante de phase  $\beta$ , b) Atténuation  $\alpha$  en fonction de la fréquence pour le cas CPW<sub>Clo</sub> et comparaison avec CPW<sub>Sand</sub>

### b) Simulations par HFSS

D'autres simulations ont été réalisées avec le logiciel commercial HFSS (version .11) d'Ansoft. Un premier travail, initié par J.P. Michel au cours de son DRT [3], puis par E. Bènevent au cours de son post-doctorat, a été d'abord de s'assurer de la possibilité de pouvoir se fier suffisamment aux résultats concernant les interactions électromagnétiques avec des couches minces ferromagnétiques qui sont conductrices, uniaxiale et fortement dispersives, ce qui constitue un cumul de grandes difficultés. Les résultats sont aujourd'hui concluants, et les champs démagnétisants, notamment, sont pris en compte par HFSS et mieux évalués que pour EMXD. Une autre difficulté consiste à simuler de très grandes structures (par exemple une longueur de 2 cm), avec un facteur de forme au regard des matériaux qui sont utilisés de plus de 400 000. Ce type de simulation est très consommateur de mémoire vive. Nous avons pour cela disposé d'un ordinateur performant au département DCIS du LETI, avec 64 GO de RAM et 8 processeurs, qui servira également au dimensionnement des antennes. Cela accélère considérablement le temps de simulation et autorise le maillage de ces structures.

Nous présentons les résultats des simulations des structures suivantes :

- CPW<sub>Air</sub> : Si / SiO<sub>2</sub> / Au (1 $\mu\text{m}$ )
- CPW<sub>Bottom</sub> : Si / SiO<sub>2</sub> / F (50nm) / STO (50nm) / Au
- CPW<sub>Sand</sub> : Si / SiO<sub>2</sub> / F (50nm) / STO (50nm) / Au (1 $\mu\text{m}$ ) / STO (50nm) / F (50nm)
- CPW<sub>Close</sub> : c'est une version où le ruban conducteur est complètement encapsulé par un parallépipède du matériau (les flancs sont droits, ce qui n'est pas réalisable technologiquement).

Les conditions expérimentales sont également recrées au niveau des dimensions, des épaisseurs, des propriétés des matériaux dont l'uniaxialité et le profil fréquentiel de la perméabilité. Les excitations sont définies par des ports localisés et normalisés à 50  $\Omega$ . On extrait des simulations la matrice des paramètres S, et on déroule avec les mêmes algorithmes

que pour la mesure l'impédance caractéristique  $Z_c$  et la constante de propagation  $\gamma$ . On a donc une information plus complète qu'avec EMXD.

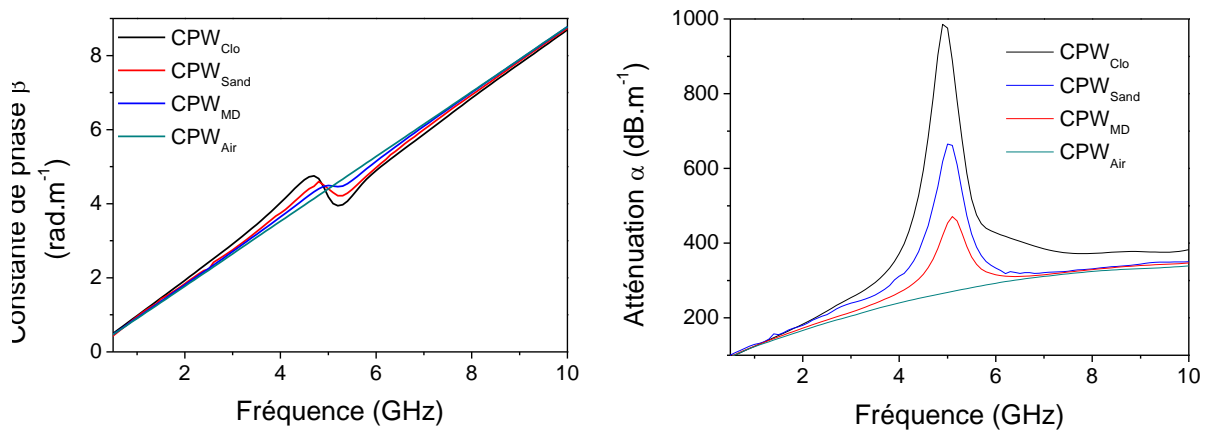


Figure 8 : Dépendance fréquentielle de la constante de phase  $\beta$  (a) et de l'atténuation  $\alpha$  (b) pour les différentes configurations de lignes CPW simulées par HFSS.

Les résultats de l'évolution fréquentielle de la constante de propagation  $\gamma$  pour les différentes lignes sont présentés figure 8. Pour plus de clarté, le cas « CPW<sub>90°</sub> » n'est pas représenté car il se superpose au cas « CPW<sub>Air</sub> ». Le premier constat rejoint donc le précédent : HFSS ne « voit » pas le diélectrique, amorphe ou cristallisé. La raison n'en est toujours pas élucidée, mais on peut supposer une trop faible épaisseur du STO et une excitation du champ électrique RF perpendiculaire à la couche.

Le potentiel de miniaturisation PM% a été calculé pour chaque configuration, ce qui est résumé tableau 4. Encore une fois, il apparaît que plus l'onde est confinée, plus PM% augmente. Les pertes restent modérées avant la résonance ferromagnétique et proches de celles du cas « CPW<sub>Air</sub> » jusqu'à 2 GHz cette fois ci. On a donc plus de pertes qu'avec EMXD.

	Bottom	Sandwich	Encapsulé
Alternance	N=1	N=1	N=1
PM%	2.4 %	7.7 %	9.6 %
$\mu_{dc}$	170	175	180

Tableau 4 : Résumé de l'interaction entre l'HMD et les différentes configurations CPW simulées par HFSS.

Ces résultats confirment que la topologie « Encapsulé » est de loin la plus intéressante, mais aussi la plus compliquée à réaliser technologiquement. De plus, ici, la simulation n'est pas réaliste ; les flancs ne peuvent être droits. Par contre, J.P. Michel a développé au cours de son DRT un procédé permettant de réaliser ce type de structures avec des flancs inclinés. On profite alors avantageusement du couplage d'échange antiferromagnétique qui force l'aimantation à rester plane sur les flancs, malgré l'inclinaison.

### c) Simulations analytiques

Afin de pallier la longueur et la lourdeur des simulations par éléments finis, un modèle analytique pour simuler et prédire le comportement de couche minces magnéto-diélectriques a été développé par E. Bènevent au cours de son post-doctorat au laboratoire [2] (cf. chapitre II.3.4). Nous présentons ici les résultats les plus significatifs comparant des résultats de mesures à ceux du modèle (figure 9). On remarque d'entrée que le modèle ajuste bien les mesures (courbes en pointillés). Cette validation autorise une prédiction qui n'a pas été possible par les méthodes par éléments finis (on rappelle que le STO est transparent à ces méthodes), en introduisant la valeur maximal de la permittivité ( $\epsilon_r \sim 100$ ) pour la version cristallisé du STO. On obtient alors un potentiel de miniaturisation de l'ordre de 30 %. C'est la première fois que ce potentiel de miniaturisation est mis en évidence et offre un début de confirmation à ce matériau malgré sa relative faible épaisseur ici. Les perspectives d'améliorations restent nombreuses, dont l'augmentation du nombre d'alternances ( $N > 2$ ) et les topologies « confinées » que le ne modèle ne peut décrire. En effet, ce modèle ne prend en compte que la version « Bottom », c'est-à-dire avec le matériau sous la métallisation. On peut cependant penser que des taux de miniaturisation de l'ordre de 50 % et plus sont possibles.

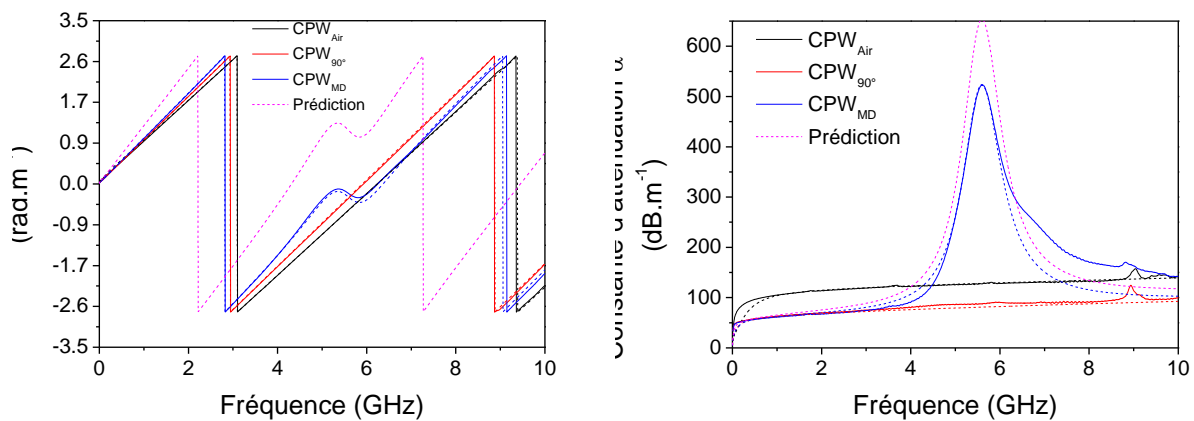


Figure 9 : Dépendance fréquentielle de la constante de phase  $\beta$  (a) et de l'atténuation  $\alpha$  (b) pour les différentes configurations CPW simulées par HFSS.

### 1.3) Lignes coplanaires non résonantes

Comme nous venons de le voir précédemment, l'efficacité du matériau MD sur la miniaturisation est liée à l'optimisation du couplage entre l'onde et le matériau. Or, bien que les couches minces possèdent intrinsèquement de très fort niveaux de perméabilité et de permittivité, leur contribution est fortement réduite dès lors que l'excitation RF n'est pas contenue dans le plan de la couche du fait de leur faible épaisseur. C'est ici un point limitant à la puissance des couches minces (notions de grandeurs effectives). Si l'on prend l'exemple particulier nous concernant, les lignes CPW, le champ électrique planaire est concentré dans les gaps alors que le champ magnétique planaire est concentré au dessus du ruban (cf. figure 10). Il faut donc rechercher un compromis entre l'excitation magnétique et diélectrique, ce que les réalisations précédentes ne permettaient pas. En effet, on se rappelle que pour des

questions de facilité et de rapidité de fabrication des lignes résonantes, le matériau et la ligne étaient gravés simultanément. Ici, on se propose de dissocier la largeur du motif MD de celle du ruban central. Pour cela, nous disposerons d'une technologie développée par J.P. Michel au cours de son DRT [3]. Elle consiste en différents designs de lignes coplanaires de petites dimensions (1 mm de long) dont on peut faire varier la largeur du motif MD déposé. Leur résonance dimensionnelle est repoussée aux alentours de 40 GHz, d'où la dénomination de lignes CPW non résonantes. Par conséquent, le potentiel de miniaturisation ne pourra être étudié à travers la résonance dimensionnelle, et l'on se contentera alors de la définition relative à l'augmentation de la pente de la constante de propagation (cf. Eq. 5). Elles ont également un intérêt fort pour l'étude de la perméabilité très haute fréquence et l'étude de futurs dispositifs intégrables sur silicium ayant recours à la perméabilité (inductances, filtres).

### a) *Description des CPW non résonantes*

Les étapes technologiques consistant à fabriquer ces lignes coplanaires ont déjà été réalisées au préalable. Elles ont été fabriquées sur du silicium haute résistivité ( $\sim 3 \text{ k}\Omega\cdot\text{cm}^{-1}$ ) oxydé thermiquement. La métallisation – 1  $\mu\text{m}$  de cuivre – est faite par un procédé damascène, c'est-à-dire que les motifs de cuivre sont enterrés dans de la silice. Au contraire des lignes CPW résonant à 2 GHz, le matériau est déposé cette fois ci au dessus de la métallisation et en est séparé par 1  $\mu\text{m}$  de  $\text{SiO}_2$ . Puis les motifs sont gravés par IBE. Les différents designs de lignes et de motifs du matériau déposé offrent un très large panel de test, les principaux motifs nous concernant sont :

- 5 largeurs de ruban conducteur central (5-10-15-50-150  $\mu\text{m}$ ), et de 1 mm de long
- La possibilité d'étendre la largeur matériau au dessus des gaps : du ruban central « 0g », au quart de gap «  $\frac{1}{4}g$  », demi gap «  $\frac{1}{2}g$  », et jusqu'à recouvrir les gaps « g », et enfin s'étendre jusqu'au milieu des plans de masse.
- Des références  $\text{CPW}_{\text{Air}}$
- Des motifs Open et Shorts adaptés pour le de-embedding de chaque CPW

L'étude portera sur une double alternance ( $N = 2$ ) de l'empilement MD sur les lignes de ruban central de  $W = 10 \mu\text{m}$  et de gap de  $G = 15 \mu\text{m}$ . Les motifs magnéto-diélectriques auront une largeur  $W_{\text{MD}}$  suivant la nomenclature suivante : « 0g » pour  $W_{\text{MD}} = 10 \mu\text{m}$ , «  $\frac{1}{4}g$  » pour  $W_{\text{MD}} = 17.5 \mu\text{m}$ , «  $\frac{1}{2}g$  » pour  $W_{\text{MD}} = 25 \mu\text{m}$  et « g » pour  $W_{\text{MD}} = 40 \mu\text{m}$ . Ces variations consistent en des largeurs du motif magnéto-diélectrique s'étendant au dessus du conducteur central jusqu'aux bords intérieurs des rubans de masse (figure 10).

Ici aussi, nous procédons à trois mesures :

- $\text{CPW}_{\text{Air}}$  : la ligne n'est pas chargée, elle sert de référence
- $\text{CPW}_{\text{MD}}$  : la ligne est chargée par la structure magnéto-diélectrique
- $\text{CPW}_{90^\circ}$  : la ligne est chargée, mais saturée magnétiquement ( $\mu = 1$ )



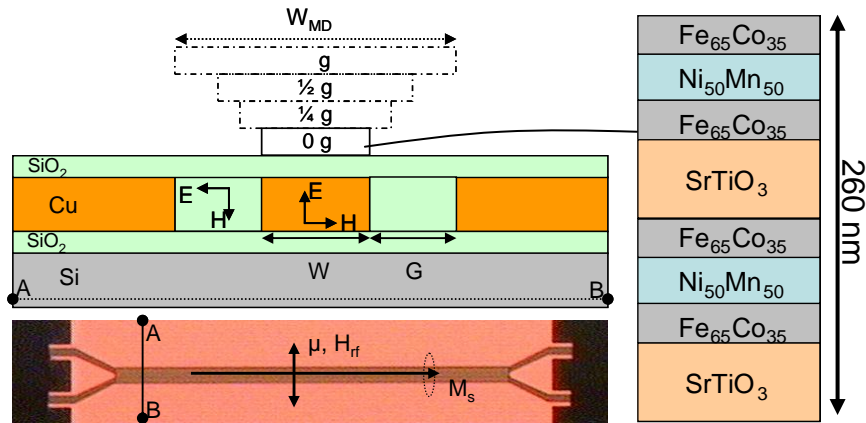


Figure 10 : Schématique de différentes structures CPW étudiées. Photo : correspondance pour  $W_{MD} = 40\mu\text{m}$ .

### b) Résultats

Du fait de l'absence de résonance dimensionnelle, dans la plage de mesure (0-20 GHz), ces lignes se prêtent particulièrement bien à l'extraction de la perméabilité dynamique, ce par quoi nous allons commencer. La perméabilité effective est extraite à partir du produit  $Z_c * \gamma$  et soustraite à la ligne à vide (cf. II.3). Puis, elle est normalisée au volume magnétique, et un facteur de calibration est calculé à partir du modèle LLG complet pour le plus fin des motifs (« 0g »), là où le champ magnétique est le plus homogène dans la couche magnétique. Ce facteur de calibrage est ensuite appliqué aux autres configurations (figure 11).

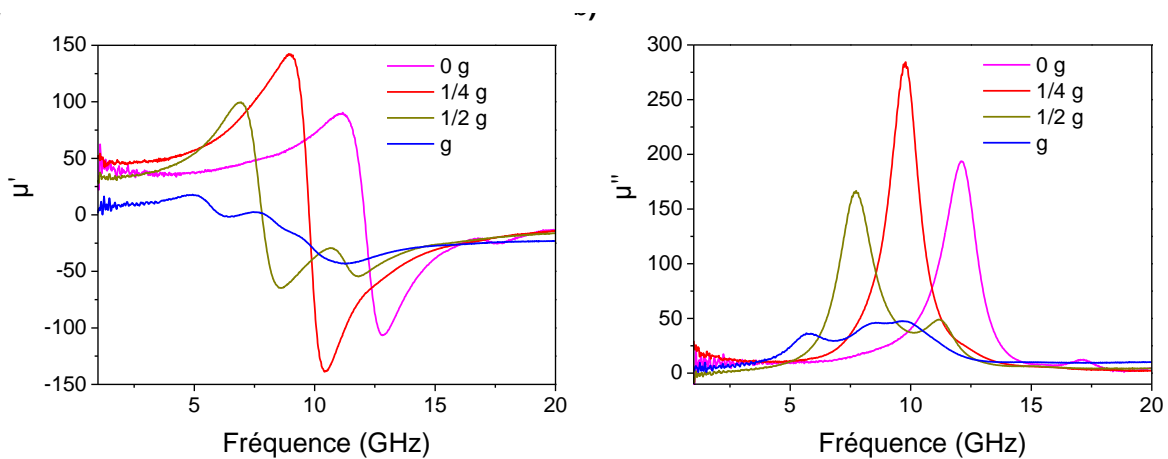


Figure 11 : Perméabilité extraite pour chacun des motifs mesurés.

MD	0 g (10 $\mu\text{m}$ )	1/4 g (17.5 $\mu\text{m}$ )	1/2 g (25 $\mu\text{m}$ )	g (40 $\mu\text{m}$ )
$\mu_{dc}$	34	52	43	8
$\epsilon_{dc}$	18	18	18	18

Tableau 5 : Perméabilité extraite des mesures pour chacune des structures, et permittivité supposée.

Concernant de la perméabilité effective extraite pour chaque structure, on constate qu'en élargissant de l'élément MD ( $W_{MD}$ ) par rapport au ruban central,  $f_r$  diminue de 12 à 7 GHz. Cela est dû aux champs démagnétisants très intenses ici du fait des petites dimensions latérales. A partir du «  $\frac{1}{2} g$  » une seconde résonance apparaît, liée au caractère hautement inhomogène de l'excitation magnétique dans cette région ; le modèle LLG n'est plus complètement valide, contrairement aux autres cas. Cette inhomogénéité se ressent aussi sur les niveaux de perméabilité intrinsèque  $\mu_{dc}$  qui devraient augmenter avec la diminution de  $f_r$  et qui au contraire chutent à partir de «  $\frac{1}{2} g$  » (tableau 5).

Les évolutions en fonction de la fréquence de la constante de propagation  $\beta$  et de la constante d'atténuation  $\alpha$  des différentes structures sont tracées figure 12, et les différentes valeurs du potentiel de miniaturisation estimées sont récapitulées tableau 6. On constate bien que les effets de  $\mu'$  et  $\mu''$  transparaissent sur  $\beta$  et  $\alpha$ , respectivement. Pour toutes les configurations, PM% augmente en présence du matériau magnéto-diélectrique et cela d'autant plus que  $W_{MD}$  est grand, atteignant jusqu'à 40 %. Cette tendance pourrait être imputable à l'augmentation du volume magnétique, malgré la chute de  $\mu_{dc}$ , mais l'analyse du cas « saturé », où  $\mu_{dc} = 1$ , révèle une augmentation significative et comparable de  $\beta$  (jusqu'à PM% = 26%), notamment à partir de «  $\frac{1}{2} g$  ». Ceci semble corrélé à la présence du diélectrique ( $\epsilon$ ) dans les gaps. En effet, au-delà de  $\frac{1}{2} gap$ , on peut raisonnablement supposer qu'il y a une meilleure excitation de la couche de STO, puisque l'énergie électrique est plus concentrée dans les fentes. Par contre, on notera que l'effet de la couche de STO est insignifiant à «  $0g$  », au contraire du cas de lignes résonant à 2 GHz. Une hypothèse avancée est que sa contribution est diluée avec celle de la silice séparant le MD du ruban central, qui est beaucoup plus épaisse (1  $\mu m$ ).

Cependant, lorsque nous simulons sous HFSS les cas « CPW<sub>90°</sub> », la simulation confirme le résultat expérimental (tableau 6). Or, on se rappelle que la couche de STO n'est pas « vue » par HFSS. Il apparaît donc clairement que l'augmentation de PM% est principalement attribuée au caractère métallique des couches magnétiques, et non à la couche de STO dans le cas « CPW<sub>90°</sub> », ce qui révèle un point limitant du matériau MD.

Concernant la constante d'atténuation  $\alpha$ , les pertes restent modérées avant la résonance ferromagnétique, très proches de celle la ligne à vide pour les structures allant jusqu'au «  $\frac{1}{2} g$  ». Au delà, des pertes en excès sont observables et sont attribuables à l'effet métallique. Toutefois, des essais de segmentation des motifs ont montré une réduction possible de  $\alpha$  de l'ordre de 30% à 5 GHz.

Ces résultats montrent que l'influence d'un matériau magnéto-diélectrique ayant une forte perméabilité et une forte permittivité sur une CPW est complexe. L'influence de la conductivité des couches ferromagnétiques devient dominante dès lors que l'on cherche à recouvrir les gaps. Finalement, un compromis semblerait être localisé entre «  $\frac{1}{4} g$  » et «  $\frac{1}{2} g$  », puisque cela autoriserait une contribution magnétique optimale et une contribution partielle mais significative du diélectrique, tout en minimisant les effets de la conductivité. Par contre, il semblerait que le STO n'est pas d'effet sur ces CPW et la réponse avancée ici est que la couche de STO étant séparée de la ligne de signal par 1  $\mu m$  de silice, son effet est trop dilué pour être observé.

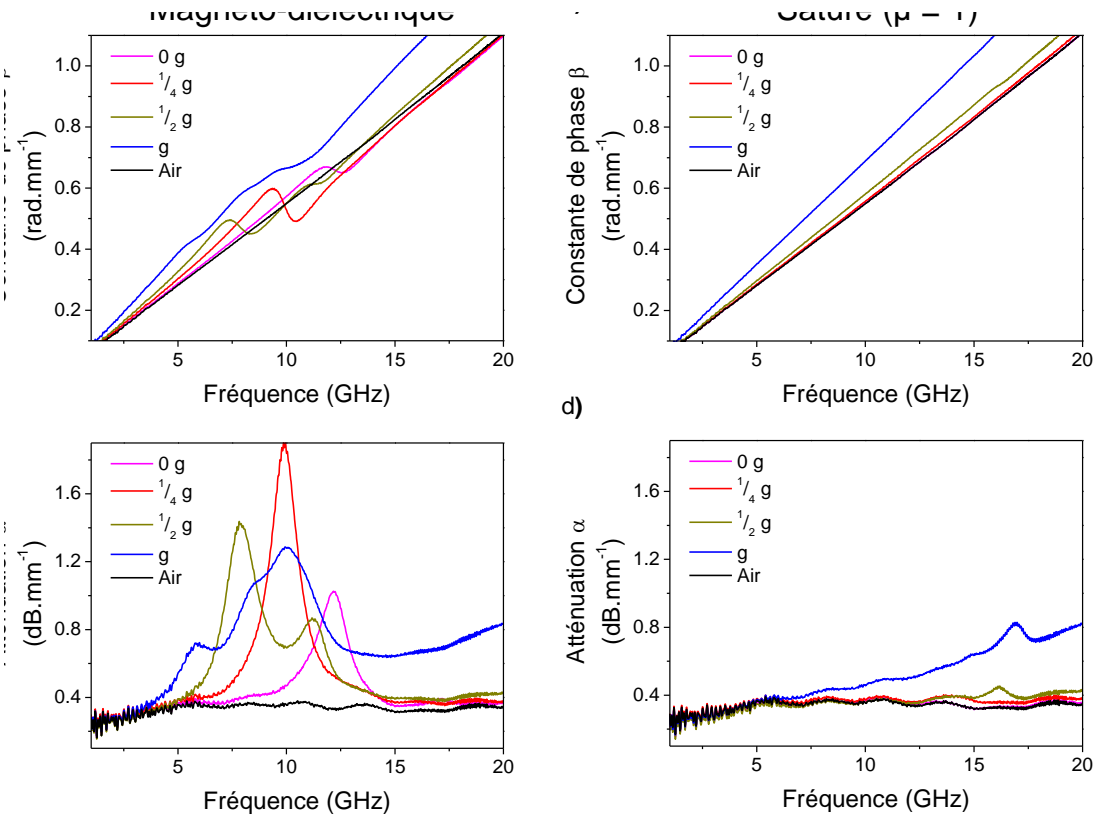


Figure 12 : Constante de phase et d'atténuation de chacun des motifs mesurés pour les cas magnéto-diélectriques (a, c) et saturé (b, d).

$W_{MD}$	0 g	$\frac{1}{4}$ g	$\frac{1}{2}$ g	g
PM (%)	(10 $\mu$ m)	(17.5 $\mu$ m)	(25 $\mu$ m)	(40 $\mu$ m)
CPW <sub>MD</sub> (exp)	1.9 %	7.8 %	17.5 %	40.6 %
CPW <sub>90°</sub> (exp)	0.3 %	1.1 %	5.9 %	26.5 %
CPW <sub>90°</sub> (HFSS)	0 %	2.3 %	7.5 %	28.2 %

Tableau 6 : Perméabilité, permittivité et potentiel de miniaturisation PM% extraits des mesures et de simulations pour chacune des structures.

### 1.4) Conclusion

Pour conclure sur cette partie, l'hétérostructure magnéto-diélectrique agit fortement sur la propagation d'une ligne coplanaire, puisque avec seulement 50 nm de matière diélectrique et 50 nm de matière magnétique on en réduit de presque 10 % la longueur électrique. De plus, l'ajout de MD sous la ligne coplanaire a un effet bénéfique surprenant car il réduit fortement les pertes du substrat silicium. On le voit dans le paragraphe consacré aux lignes non résonantes, la recherche d'un optimum d'interaction entre l'onde et le matériau est limitée par le caractère conducteur du matériau magnétique. De plus, il semble que ces lignes coplanaire de petite taille ne ressentent pas la contribution de la couche de STO. On suppose que son effet est dilué par le micron d'isolation de SiO<sub>2</sub>. Au contraire, pour les lignes macroscopiques la couche de STO est directement collée au ruban central et son effet est alors notable : 5 % de miniaturisation du à  $\epsilon = 18$  seul.

En parallèle, nous avons effectué des simulations numériques électromagnétiques. Il en ressort que la couche de STO n'est pas « vue » par les simulateurs ; par conséquent, toute optimisation numérique via les paramètres du matériau (ici  $\epsilon$ ) est restée vaine. Néanmoins, un modèle analytique prédictif proposé par E. Bènevent estime une miniaturisation de l'ordre de 30% en utilisant la phase cristallisée du STO ( $\epsilon=100$ ) et en augmentant les épaisseurs par un facteur 2, ce qui nous laisse optimiste quant à une marge de progression plus importante par la suite. En revanche, d'autres simulations préliminaires confirment le principe de confinement du signal de la ligne par le matériau avec un couplage onde-matière dont l'effet peut être plus que doublé. On notera que la configuration optimale, lorsque la ligne de signal est encapsulée par le matériau ( $CPW_{Cl_0}$ ), est relativement complexe et coûteuse à réaliser, alors que la configuration « sandwich » est plus avantageuse en terme de fabrication et de compromis d'efficacité ( $PM\% = 8\%$ ).

## II) Objets rayonnants

La réduction de la taille des antennes, l'augmentation de leur bande passante et une meilleure efficacité sont aujourd'hui parmi les grands enjeux industriels pour les télécoms. En effet, il y a un besoin croissant de multiplier au sein d'un seul dispositif plusieurs antennes, chacune adaptées à la bande de communication nécessaire (GPS, WIFI, GSM, TV etc...) et/ou de les rendre agiles pour en réduire le nombre. Mais les antennes souffrent d'une manière générale d'un défaut de miniaturisation qui limite leur intégration dans les dispositifs actuels. De plus, les techniques qui consistent à les miniaturiser, en jouant sur leurs topologies ou en utilisant des substrats céramiques à forte permittivité, réduisent fortement leur bande passante. Dans ce contexte, l'intégration de notre hétérostructure magnéto-diélectrique pourrait être favorable à cet enjeu puisque nous avons observé une compression significative des longueurs d'onde – mais en CPW. De plus ici, on a un moyen très avantageux pour augmenter la bande passante en jouant sur le ratio  $\mu/\epsilon$  dont la bande passante est directement dépendante.

Il semble donc opportun d'essayer d'incorporer notre hétérostructure magnéto-diélectrique à cette thématique. A cette fin, nous avons travaillé avec le département DCIS du CEA-LETI, et particulièrement le laboratoire SMOC, spécialisé dans l'étude, la simulation et la réalisation des antennes, ainsi que l'IETR à Rennes. Le travail expérimental et de simulation a été principalement mené par François Grange (DCIS) et Damien Rialet (IETR), tout deux en thèse dans le cadre du même projet (Radio Opportuniste). On notera qu'ils se sont confrontés aux mêmes difficultés que pour la simulation des lignes résonantes, avec en plus des facteurs de forme beaucoup plus défavorables et des temps de simulation très longs.

Je commence cette partie en rappelant que notre matériau magnétique est uniaxial, ce qui est tout à fait « exotique » pour les antennistes, et requiert donc une excitation E/H spécifique. La première étape est donc d'identifier des topologies d'antennes simples et intégrables répondant à ces conditions d'excitation, qui vont s'avérer être le dipôle et le patch. Nous décrirons par la suite brièvement ces antennes, ainsi que le travail réalisé.

## 2.1) Antennes : les points clés

Une antenne est un transducteur qui assure l'adaptation d'impédance entre un équipement radio fréquence et un milieu de propagation de manière réciproque afin de transmettre une information. Elle convertit les grandeurs électriques dans une ligne de transmission (tension/courant) en grandeurs électromagnétiques dans l'espace (champ électrique / champ magnétique) et réciproquement. Voici quelques propriétés caractéristiques aux antennes :

- La fréquence d'utilisation : une antenne s'utilise en général pour un signal d'une fréquence donnée autour de laquelle l'antenne possède des capacités optimales pour émettre ou recevoir l'énergie électromagnétique correspondante dans l'espace environnant. La fréquence de résonance d'une antenne dépend de ses dimensions, mais aussi des éléments qui lui sont ajoutés (substrat, éléments de charge...).
- L'impédance d'entrée : elle est analogue à l'impédance caractéristique discutée auparavant dans le cadre des guides d'ondes coplanaires. C'est à partir de cette impédance que l'on déterminera le régime de fonctionnement de l'antenne. On dit d'une antenne qu'elle résonne à une fréquence si à cette fréquence le terme imaginaire de  $Z$  est nul.
- Le diagramme de rayonnement : l'antenne isotrope est un modèle théorique irréalisable dans la pratique. En réalité, l'énergie rayonnée par une antenne est répartie inégalement dans l'espace, certaines directions étant privilégiées : ce sont les « lobes de rayonnement ». Le diagramme de rayonnement d'une antenne permet de visualiser ces lobes dans les trois dimensions, dans le plan horizontal ou dans le plan vertical incluant le lobe le plus important. On définit alors la directivité de l'antenne. Le plus souvent, il est mesuré en chambre anéchoïde.
- Le gain : il définit l'augmentation de puissance émise ou reçue dans le lobe principal. Il est dû au fait que l'énergie est focalisée dans une direction. Il s'exprime en dBi (décibels par rapport à l'antenne isotrope parfaite).
- La directivité : elle est définie dans le plan horizontal et c'est une caractéristique importante dans le choix d'une antenne. Elle sera d'autant plus directive que le lobe le plus important sera étroit. La directivité correspond à la largeur du lobe principal, entre les angles d'atténuation à 3 dB.
- La bande passante : c'est l'excursion en fréquence pour laquelle une grandeur caractéristique (coefficient de réflexion, gain maximum, ouverture du faisceau à mi-puissance, niveaux des lobes secondaires, polarisation) reste contenue dans une plage de valeur fixée. Dans le cas des antennes résonantes, on définit cette bande passante à -9.54 dB, c'est-à-dire que toute la puissance de l'antenne autour de la fréquence de résonance étant inférieure à cette valeur fera partie de la bande passante. La bande passante d'une antenne diminue si l'antenne devient petite par rapport à la demi-onde : il n'existe pas d'antennes larges bandes et compactes à la fois. Cette bande passante s'exprime au premier ordre comme [4] :

$$BP = \frac{96 \sqrt{\frac{\mu_{eff}}{\epsilon_{eff}}} \frac{t}{\lambda_0}}{\sqrt{2} (4 + 17 \sqrt{\mu_{eff} \epsilon_{eff}})}$$

avec  $t$  l'épaisseur du substrat et  $\lambda_0$  la longueur d'onde du vide.  
On voit ici que le rapport  $\mu/\epsilon$  permettra de régler la bande passante.

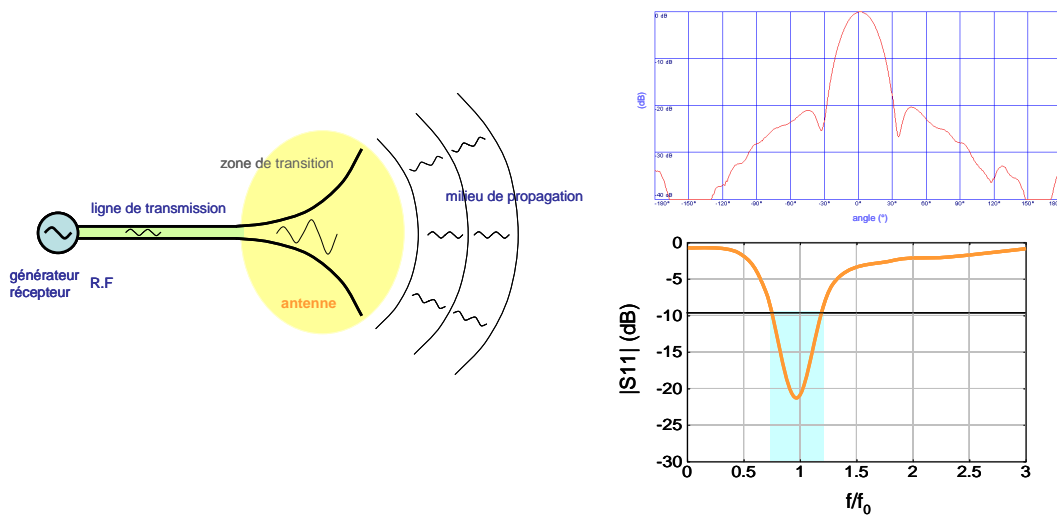


Figure 13: Schématisation d'une antenne, de son diagramme de rayonnement et de sa bande passante.

## 2.2) L'antenne dipolaire

L'antenne dipolaire est la plus simple des antennes. Elle est constituée de deux brins conducteurs de même longueur qui font office de résonateur  $\frac{1}{2}$  onde, comme schématisé figure 14.a. Le champ magnétique  $h_{rf}$  est de symétrie circulaire vis-à-vis des brins, on se trouve donc une situation favorable pour exciter le matériau dans le plan de sa couche. Le champ électrique est ici planaire, le long des brins. La propagation est quant à lui perpendiculaire au plan du matériau. A l'exception de  $h_{rf}$ , on est donc dans des configurations ( $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{k}$ ) qui diffèrent du cas de la ligne coplanaire que l'on a étudiée précédemment. Nous avons donc immédiatement cherché à voir quelles en sont les conséquences sur le couplage avec le matériau.

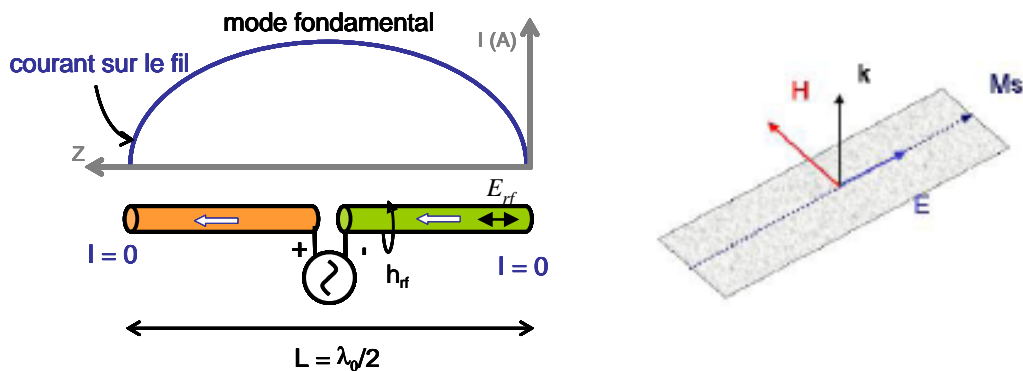


Figure 14 : Représentation schématique d'un dipôle (a) et de l'excitation RF générée (b).

Le dispositif expérimental (figure 15) a été fabriqué afin d'avoir une fréquence de résonance à 2.2 GHz et ainsi travailler dans le régime faibles pertes du matériau ( $f_r = 5$  GHz). Il est réalisé sur un substrat diélectrique faibles pertes de type Rogers 4003. Le choix d'alimentation du dipôle s'est porté sur une excitation différentielle des brins métalliques afin de s'affranchir au mieux des problèmes de dissymétrie et de se placer dans le cas de fonctionnement nominal propre au dipôle.

L'empilement magnéto-diélectrique utilisé pour cette étude est :

$$\text{STO}^{\text{PVD}}(50\text{nm}) / E_{\text{Mag}} / \text{STO}^{\text{PVD}}(50\text{nm})$$

Le matériau n'a pas pu être directement déposé sur l'antenne pour des raisons techniques, ce qui va être un problème très limitant à cette étude. Le matériau est donc posé sur les brins de l'antenne le substrat en haut. Le positionnement du substrat sur chaque brin n'est pas répétable de manière satisfaisante, ce qui nuit à la répétabilité des mesures. L'empilement étant conducteur par couplage capacitif (électrode magnétique - STO – brin métallique), le simple fait de changer un peu les dimensions du dipôle affecte son rayonnement et sa fréquence de résonance par allongement de sa longueur électrique. De plus, le gap d'air présent entre le matériau et la métallisation peut suffire à limiter grandement le couplage entre brins et matériau.

Au regard de la figure 15, qui présente les parties réelles et imaginaires de l'impédance d'entrée du dipôle, l'effet de miniaturisation existe, mais est indissociable de celui provoqué par le substrat seul (Si ici). De plus, le décalage de la fréquence de résonance peut être attribué à l'apport de pertes en excès et non à une compression de longueur d'onde. Ces résultats montrent que l'effet du matériau est ici faible et peu exploitable. L'hypothèse retenue quant à cette faible interaction est que l'énergie du dipôle n'est pas concentrée sur les brins, mais principalement entre les brins, là où le matériau ne peut être placé à cause de son caractère conducteur (couplage capacitif générant des courts circuits). La conséquence est que l'onde se couple très faiblement au matériau. Nous concluons que l'antenne dipôle n'est donc pas un dispositif adapté à cette étude.

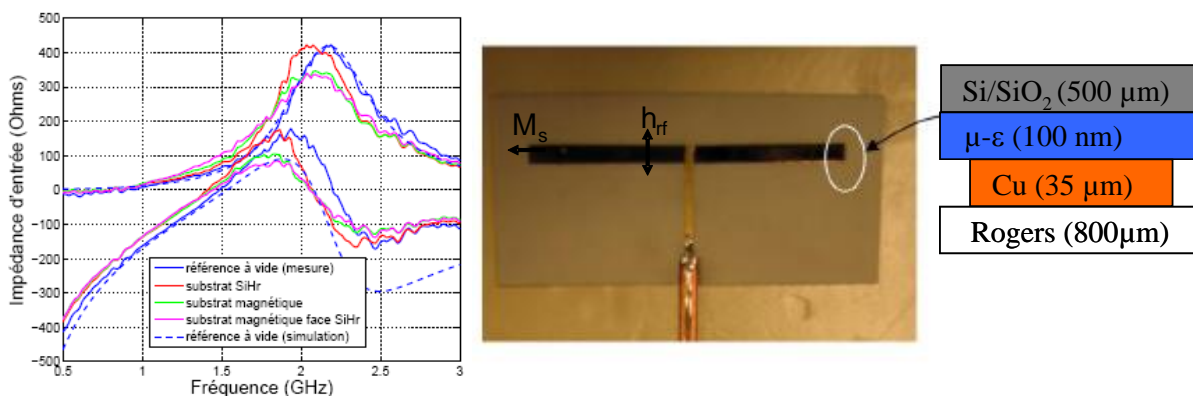


Figure 15 : Impédance d'entrée de l'antenne dipolaire pour les différentes configurations mesurées et dispositif expérimental utilisé où les deux brins sont chargés par deux échantillons de l'hétérostructure comme représenté schématiquement à droite

### 2.3) L'antenne patch

Les couches minces magnéto-diélectriques (et conductrices) ne semblent donc pas adaptées à l'excitation d'une antenne dipolaire. Une autre antenne simplement réalisable et modélisable analytiquement est l'antenne patch. Elle est plus proche d'une ligne micro-ruban en terme d'excitation : le champ électrique  $\vec{E}$  est ici perpendiculaire et le champ magnétique  $h_{rf}$  et le vecteur d'onde  $\vec{k}$  sont horizontaux dans le plan dans la cavité (figure 16). La fréquence de résonance dépend principalement des dimensions du toit. Ce type d'antenne semble donc plus favorable que le dipôle.

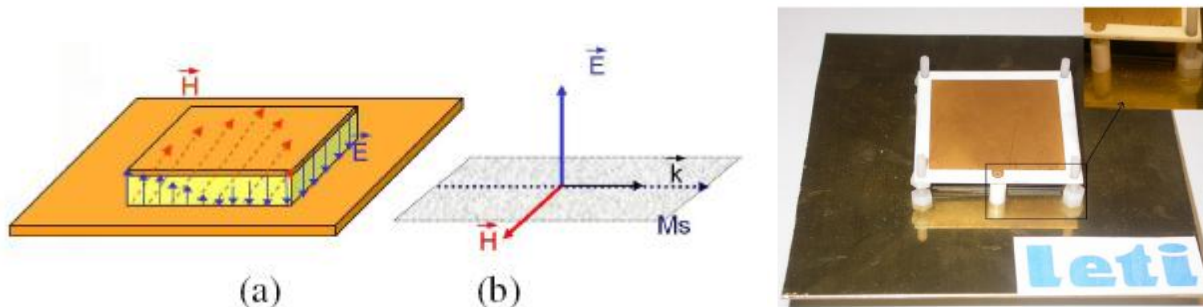


Figure 16 : a) Représentation schématique de l'antenne patch et des champs RF associés, b) Configuration magnétique associée, c) dispositif de test fabriqué par DCIS/SMOC

Nous l'avons vu auparavant, le substrat de silicium malgré sa haute résistivité reste défavorable. C'est pourquoi nous avons décidé de nous affranchir de ce problème en utilisant des substrats de verre (Corning Glass 1737), ici d'épaisseur  $700\mu\text{m}$  afin de permettre le dépôt du matériau dans des conditions similaires à celui sur silicium.

Les tests ont été réalisés avec une antenne patch possédant une fréquence de résonance centrée sur 2.8 GHz. L'élément rayonnant (toit) est réalisé sur la face supérieure d'un substrat à faible perte assurant la fonction de support mécanique. Par ailleurs, certaines contraintes sur l'introduction du matériau au sein de la cavité imposent un emplacement externe de la sonde d'alimentation (figure 16.c). En conséquence, l'adaptation d'impédance est obtenue ici par couplage capacitif. Par contre, le couplage capacitif peut être problématique d'un point de vue répétabilité, le contact de la pointe avec le toit étant sensible et crucial à l'excitation du bon mode. Les échantillons sont découpés aux dimensions du toit et ainsi, la cavité, initialement remplie d'air, peut être aisément chargée par le substrat magnéto-diélectrique avec la possibilité de superposer plusieurs échantillons l'un sur l'autre.

Nous procédons aux mesures de l'impédance d'entrée (réelle et imaginaire) pour trois configurations, tracées figure 17.c (traits pleins) et nous les comparons à celles de simulations (courbes en pointillé) :

- La première mesure consiste à laisser la cavité remplie d'air. Elle servira de référence. On constate un bon accord entre simulation et mesures (courbes bleues), avec une fréquence de résonance à 2.77 GHz.
- Puis, la cavité est chargée par quatre échantillons vierges de Corning Glass afin d'une part de se rapprocher du toit et d'autre part de mesurer la contribution du substrat de verre (courbe rouge). La fréquence de résonance est décalée à 2.61 GHz avec donc un effet de miniaturisation dû à la constante diélectrique des substrats d'environ 6 %.



- Dans un troisième temps, le dernier substrat vierge est remplacé par l'échantillon magnéto-diélectrique. La contribution du matériau est nettement visible (courbe verte), avec un fort décalage de la résonance vers les basses fréquences. La fréquence de résonance est décalée à 2.08 GHz avec un effet de miniaturisation important ici de 20 %.

Cependant, après un long travail d'investigation expérimental et de simulation afin de certifier les origines de cette réduction, il est apparu que la miniaturisation est en réalité due au caractère métallique de l'empilement magnétique. Sa présence dans la cavité introduit un résonateur « parasite », comme schématisé figure 17.b. En dépit de l'excitation par la sonde appliquée seulement sur l'élément rayonnant, le matériau magnéto-diélectrique est également excité et rayonne à son tour, et sa fréquence de résonance dépendra de sa position dans la cavité. Cela a été confirmé en simulation, où l'hétérostructure est remplacée par un conducteur (de même conductivité et même épaisseur que l'empilement magnétique), comme montré figure 17.c (courbes vertes).

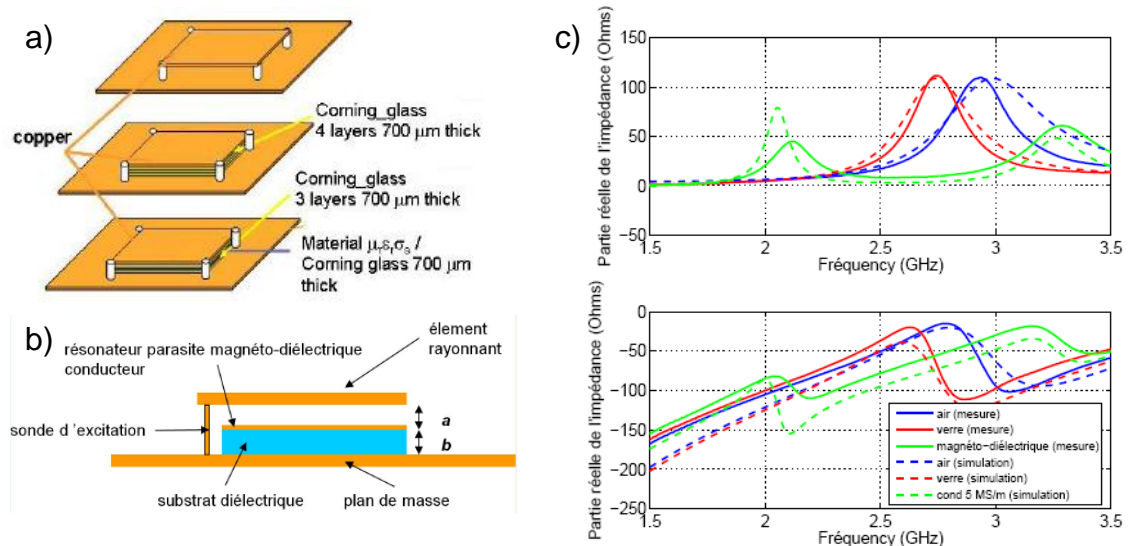


Figure 17 : a) Illustration des expériences réalisées, b) Représentation du phénomène de résonateur parasite c) Résultats de mesure et simulation des différents systèmes.

On en conclut donc que le caractère conducteur des matériaux magnétiques est un point limitant aux antennes. Il serait cependant possible de limiter l'effet conducteur, soit par le choix d'un matériau ferromagnétique plus résistif, soit par structuration de l'échantillon. En revanche la comparaison les simulations entre substrat conducteur et substrat magnéto-diélectrique indique une miniaturisation de 4 %, ce qui reste faible, mais par contre une forte augmentation de la bande passante : 100 %. Notons que le rayonnement de l'antenne patch est fortement affecté par l'introduction du matériau, et qu'il n'est alors plus possible de définir la bande passante à -10 dB. Nous l'avons donc défini ici comme la largeur de raie à mi hauteur, la valeur de 100% n'est donc qu'indicative. Néanmoins, c'est la piste qu'il semble falloir suivre quand à l'utilisation de couches minces ferromagnétiques avec des systèmes antennaires.

## 2.4) Conclusion

Pour conclure sur cette partie, nous pensons que l'utilisation de l'hétérostructure magnéto-diélectrique développée au cours de ce travail n'est pas appropriée à la miniaturisation des antennes, tout du moins dans sa configuration actuelle (trop conductrice et non structurée) et avec l'utilisation d'antennes conventionnelles type dipôle et patch. Par ailleurs, nous soulevons le problème de la notion de grandeurs « effectives » associée aux antennes et qui semble antinomique avec celles associées aux couches minces. En effet, les champs électriques et magnétiques générés par une antenne ne sont pas guidés à la grande différence des lignes coplanaires (ou micro-ruban) et malgré une excitation E/H favorable, leurs amplitudes sont trop rapidement diluées dans l'espace. Donc, l'énergie canalisée par le matériau sera faible ou uniquement présente dans les zones de concentration du courant. L'effet de miniaturisation restera en apparence très limité. De plus, le caractère conducteur de l'électrode magnétique est pénalisant car il crée des effets résonnants parasites ou des courts circuits locaux. Des pistes d'améliorations sont proposées en perspectives.

Nous donnons ici, à titre d'illustration du compromis difficile entre antennes et couches minces, l'exemple d'un papier récent [5] : les auteurs montrent qu'une antenne patch dont le toit a été recouvert par 1  $\mu\text{m}$  de CoFeB voit sa fréquence de résonance décalée de 1% pour une variation de perméabilité de 100 %, ce qui est très faible avec pourtant un micron de matière. En revanche, ils mettent en évidence qu'il y a une augmentation de la bande passante de près de 50 %, avec de plus la possibilité d'ajuster cette bande passante par un champ magnétique statique extérieur. Il y a donc des alternatives à la miniaturisation, qui seront brièvement détaillées dans les perspectives.

## Références

- [1] Dylan F. Williams and Roger B. Marks, "Accurate Transmission Line Characterization", IEEE Microwave and Guided Wave Letter, Vol. 3, p. 247-249 (1993)
- [2] E. Bènevent, K. Garelo, B. Viala, "High Permeability and High Permittivity Heterostructures for the Miniaturization of RF Components", IJMWT (10/2009)
- [3] Jean-Philippe Michel, « Lignes coplanaires ferromagnétiques sur silicium pour applications microondes », Diplôme de Recherche Technologiques, Université Joseph Fourier de Grenoble (2006)
- [4] H. Mosallaei, and K. Sarabandi, "Magneto-Dielectrics in Electromagnetics Concept and Applications", IEEE Trans. Ant. Prop., Vol. 52, p. 1558 (2004)
- [5] N.X. Sun, J.W. Wang, A. Daigle, C. Pettiford, H. Mosallaei and C. Vittoria, "Electronically tunable magnetic patch antennas with metal magnetic films", Electronics Letter, Vol. 43, N°8 (2007)





# Conclusion Générale

Grâce aux très grands progrès des techniques de dépôt des couches minces et à leur maîtrise, aujourd'hui le CEA-LETI et LITEN ont un catalogue de matériaux très large aux propriétés optimisées dont font partie notamment le magnétisme et la ferroélectricité. La thématique des matériaux hétérogènes fonctionnalisés et intégrables est ainsi en plein essor. Dans la famille des « multiferroïques composites », nous nous sommes attachés tout au long de ce manuscrit à démontrer la possibilité de combiner en couches minces des matériaux à forte perméabilité et des matériaux à forte permittivité sur une plage étendue en fréquence (1-10 GHz). Ceci est fait dans l'optique de miniaturiser à l'extrême des dispositifs hyperfréquences afin de faire face à la multiplication des standards de télécommunications et ainsi répondre aux futures exigences des plateformes télécoms. Pour cela, nous nous sommes appuyés sur les travaux de deux thèses récentes mais totalement disjointes, l'une dédiée au ferromagnétisme pour les hyperfréquences, l'autre consacrée à la compatibilité CMOS des pérovskites à forte permittivité. Or, c'est précisément un critère de compatibilité de température qui a été la motivation principale de cette étude afin de lever le verrou historique à l'association de ces propriétés de forte perméabilité et de forte permittivité dans un même matériau, et plus généralement de phases électriques et magnétiques que l'on souhaite coexistantes.

Nous nous sommes donc, dans un premier temps, attachés à optimiser les propriétés d'une électrode magnétique douce pour les hyperfréquences reposant sur le principe d'un couplage entre un alliage ferromagnétique à très haute aimantation (F), ici  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  ( $M_s \sim 2.4$  T) et un alliage antiferromagnétique (AF) à très forte constante d'échange interfacial, ici NiMn ( $J_{ex} \sim 0.4 \cdot 10^{-7}$  J.cm<sup>2</sup>). Le recours à ce principe a permis de stabiliser un empilement type F/AF/F aux propriétés remarquables pour le magnétisme hyperfréquence, possédant une fréquence de résonance ( $f_r$ ) très élevée et ajustable de 5 à plus de 20 GHz, ainsi qu'une très forte perméabilité quasi-ultime, avec  $\mu_{dc} = 180$  pour  $f_r = 5$  GHz et 15 pour  $f_r = 20$  GHz et de faibles pertes ( $tg\delta \sim 3 \cdot 10^{-2}$  à 2 GHz pour  $f_r = 5$  GHz). De plus, nous avons montré que grâce au couplage d'échange F/AF, la fenêtre de température de procédé pouvait être étendue jusqu'à 350°C, température inaccessible pour les alliages magnétiques doux conventionnels. Le recours à ces propriétés de perméabilité dynamique et de couplage antiferromagnétique fait appel à des notions de magnétisme spécifiques qui ont été longuement décrites dans le chapitre I. De surcroît, la compréhension et l'analyse de ces propriétés ont nécessité l'utilisation de techniques de caractérisations pointues et à très larges bandes, ainsi que des post traitements numériques que nous avons mis au point, comme détaillé au cours du chapitre II.

Dans un second temps, qui fait l'objet du chapitre III, nous nous sommes naturellement intéressés à la cristallisation à température modérée (< 400°C) de la pérovskite à forte permittivité  $\text{SrTiO}_3$  (STO) en évaluant le potentiel de plusieurs techniques de dépôt (PVD et

IBS). L'IBS s'est avéré particulièrement avantageux. Nous sommes donc partis d'une structure de capacité MIM type à base d'électrodes de platine : Pt/STO/Pt, déjà étudiée. L'enjeu ici a porté sur le remplacement progressif des électrodes Pt, d'abord par Ru, élément constitutif des interfaces des électrodes magnétiques, puis par les électrodes magnétiques elles mêmes. Nous avons ainsi pu mettre en évidence la possibilité de cristalliser la couche de STO à 260°C en présence des électrodes magnétiques, et sans dégradation des propriétés de ces dernières, avec une permittivité extrapolée au régime microonde de l'ordre de 100. Ceci constitue un résultat de tout premier plan, avec l'obtention pour la toute première fois d'une combinaison  $\mu = 100$ ,  $\varepsilon = 100$  sur la plage 1-5 GHz. Le caractère structural du STO a été ensuite analysé par mesures de diffraction par rayons X et par observations TEM. Cette opération a révélé une très forte cristallinité de la couche de STO, mais aussi la présence de « bulles » sur les images TEM, interprétée comme de la porosité très locale, phénomène pour lequel nous n'avons pas pu pousser d'investigations. De même, les phénomènes suivants : la dépendance de la température de cristallisation et de la valeur de permittivité en fonction de l'épaisseur de STO, le caractère anisotrope de la permittivité (dans le plan des couches et perpendiculaire), la présence de lacunes d'oxygènes pouvant être exacerbées par des recuits sous vide... n'ont pu être étudiés de façon systématique du fait d'un accès au bâti de dépôt IBS trop limité dans le temps. Ces questions feront l'objet d'études ultérieures à cette thèse.

Malgré le caractère incomplet de cette étude, nous avons pu démontrer la possibilité de créer une hétérostructure magnéto-diélectrique en couche mince combinant de la forte perméabilité et de la forte permittivité, et possédant des propriétés exceptionnelles pour les applications microonde.

Logiquement dans le chapitre IV, nous avons voulu mettre en évidence le potentiel de ce matériau à la miniaturisation d'objets résonants, comme des lignes coplanaires (CPW) et des objets rayonnants, comme des antennes. Pour cela, nous avons réalisé des dispositifs expérimentaux certes très préliminaires, et associés à des modèles numériques et analytiques.

Les résultats avec des lignes coplanaires intégrant le matériau montrent très clairement qu'elles interagissent fortement avec le matériau malgré les très faibles épaisseurs utilisées ici. En effet, avec seulement 50 nm de matière diélectrique ( $\varepsilon_r = 18$ ) et 50 nm de matière magnétique ( $\mu_{dc} = 150$ ) nous réduisons de près de 10 % la longueur électrique. De plus, nous constatons que l'ajout du matériau sous la ligne CPW a un effet bénéfique car il réduit fortement la contribution du substrat silicium aux pertes. Par contre, nous avons également montré dans le cadre d'une étude sur des lignes coplanaires de petites dimensions que le caractère conducteur du matériau magnétique peut être un facteur limitant à la miniaturisation dès lors que l'on cherche à cumuler les excitations planaires du champ électrique et magnétique afin de maximiser l'efficacité du matériau sur la compression de l'onde électromagnétique. La configuration optimale reste donc à établir.

Des simulations numériques électromagnétiques ont aussi été effectuées (EMXD et HFSS). Il en ressort que la couche de STO n'est pas « vue » par les simulateurs ; par conséquent, toute optimisation numérique via les paramètres du matériau (ici  $\varepsilon$ ) est restée

vaine. Néanmoins, un modèle analytique prédictif proposé par E. Bènevent estime une miniaturisation de l'ordre de 30% en utilisant la phase cristallisée du STO ( $\epsilon=100$ ) et en augmentant les épaisseurs par un facteur 2, ce qui nous laisse optimiste quant à une marge de progression plus importante par la suite. Des simulations très préliminaires sur EMXD et HFSS confirment le principe de confinement de la ligne de signal par le matériau avec un couplage onde-matière dont l'effet peut être plus que doublé. Enfin, à ce stade, il demeure néanmoins une limitation à l'augmentation de l'épaisseur utile car la multiplication du nombre d'alternances s'accompagne d'un élargissement significatif de la largeur de raie. Nous supposons qu'il s'agit principalement d'un problème technologique qui pourra être résolu à terme.

La deuxième application phare que nous avons exploré concerne les antennes. Nous sommes surpris à l'idée que les résultats obtenus avec des lignes coplanaires ne puissent être réédités avec des antennes. En effet, l'utilisation d'un magnéto-diélectrique en couches minces ne semble pas vraiment appropriée à la miniaturisation d'antennes, tout du moins avec des antennes patches et dipolaires. La notion de grandeurs « effectives » associée aux antennes semble antinomique avec celle associée aux couches minces. Les champs électriques et magnétiques générés par une antenne ne sont pas guidés à la grande différence des lignes coplanaires et malgré une excitation E/H favorable, leurs amplitudes sont trop diluées dans l'espace. Donc, l'énergie canalisée par le matériau sera faible ou uniquement présente dans les zones de concentration du courant et l'effet de miniaturisation sera très limité, voire insignifiant. De plus, le caractère conducteur de l'électrode magnétique est pénalisant car il crée des effets résonnants parasites ou des courts circuits locaux. Des perspectives d'amélioration sont à l'étude, mais nous restons sceptiques quant à un potentiel de miniaturisation avéré avec ce matériau. Toutefois, deux alternatives à la miniaturisation que nous présentons brièvement dans les perspectives ont vu le jour suite à ce travail : l'augmentation de la bande passante d'antenne grâce à un ratio  $\mu/\epsilon \geq 1$  et ajustable, et l'introduction d'une fonction auto filtrante sur l'antenne grâce à la résonance ferromagnétiques.

En conclusion de ce travail de thèse, nous avons montré qu'il est aujourd'hui possible de créer des composites en couches minces combinant des propriétés magnétiques et électriques. Cela ouvre d'intéressantes perspectives à un vaste champ d'applications, des capteurs fonctionnalisés, aux composants RF, en explorant d'autres possibilités des combinaisons magnéto-diélectriques.





# Perspectives

Je voudrais ouvrir ici quelques perspectives, plus ou moins connexes au sujet de thèse, qui n'ont pas pu être suffisamment explorées, mais qui portent de nouveaux sujets de thèses et de projets. Je précise que l'effort a porté en priorité sur la protection de certaines de ces idées et a conduit au dépôt de deux brevets [1, 2] s'ajoutant à celui sur l'hétérostructure magnéto-diélectrique qui a fait l'objet de cette thèse [3].

## I) Vers une famille plus large de composites multiferroïques

On a vu au cours de ce manuscrit qu'il devient aujourd'hui possible de combiner en couches minces des matériaux à phases magnétiques et des matériaux à phases électriques, en conservant pour chacun des propriétés, qui si elles ne sont pas toujours optimales, restent significatives. C'est également possible en nanopoudres, mais relève d'une autre démarche. On va ainsi potentiellement pouvoir combiner des phases ferromagnétiques, antiferromagnétiques et ferroélectriques, mais aussi magnétostrictives et piézoélectriques, comme illustré figure 1. Ceci pourra être entre autre réalisé grâce au verrou partiellement levé ici de la compatibilité de température de procédé de certaines de ces phases, dont le  $\text{SrTiO}_3$  ; ce que l'on pourrait par exemple étendre sans trop de difficulté au  $\text{BaSrTiO}_3$  (BST) qui a l'avantage d'être ferroélectrique. Ces études seront enrichissantes d'un point de vue de la physique, avec de nouvelles possibilités de revisiter les effets historique de la magnétoélectricité (propriétés additives ou croisées), avec l'intégration comme objectif réaliste.

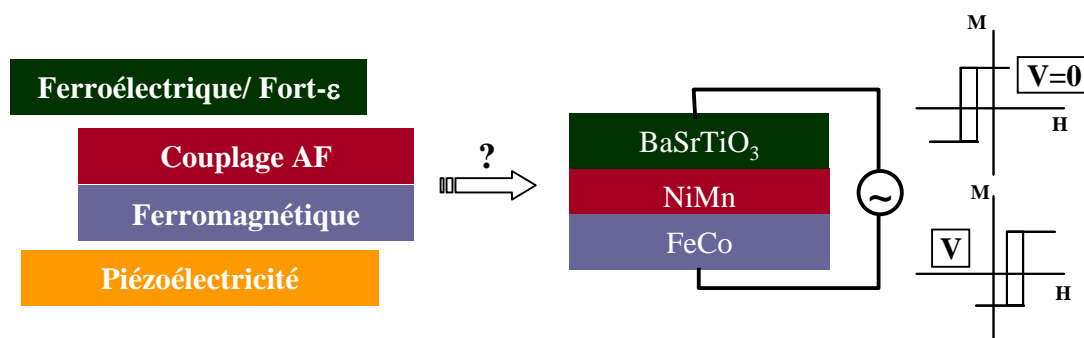


Figure 1 : Principe des composites multiferroïques et exemple d'idée du control de l'aimantation par un champ électrique via un couplage ferroélectrique/antiferromagnétique.

Ainsi, une des propriétés les plus recherchée est la commande électrique de l'aimantation, ce que les composés multiferroïques épitaxiés comme le BFO [4] commencent à réaliser, ainsi que des MEMS hybridant des structures piézoélectriques à des couches ferromagnétiques magnétostrictives (sensibles aux déformations) sont en passe de réaliser au laboratoire [5].

L'idée que l'on veut avancer ici est avantageuse vis-à-vis des deux solutions précédentes limitées dans le premier cas par l'épitanie du matériau et la technologie complexe dans le second cas. Il s'agit de réaliser une hétérostructure de type BST/AF/F (figure 1) dans laquelle l'aimantation de la couche F devient commandable par la tension ou le champ électrique appliqué au BST, en supposant un couplage entre domaines ferroélectriques et antiferromagnétiques à l'interface, à l'instar du BFO (mais où le couplage a lieu dans le volume). Des structures électriquement commandables sont facilement extrapolables pour la réalisation de composants RF accordables ou pour des mémoires magnétiques (MRAM) à très faible consommation.

## II) *Simulation micromagnétique du couplage AF*

Comme on l'a vu, le couplage antiferromagnétique, jusque là phénomène isolé du domaine de la spintronique, devient une propriété physique aux multiples intérêts (multiferroïques, magnétoélectricité, polarisation hyperfréquence...). Nous nous sommes par conséquent attachés à une description plus fine de cet effet par des techniques de simulations micromagnétiques. Ces travaux ont été réalisés par Jyo Saha au cours d'un post doctorat au CEA/INAC/NM auquel ce travail de thèse sur les électrodes magnétiques aura fait échos du point de vue expérimental. En effet, au cours de la partie I.3.3, nous avons évoqué certains modèles théoriques et numériques visant à reproduire les effets du couplage antiferromagnétique sur les propriétés de l'aimantation (champ d'échange, augmentation du champ coercitif...). Ils ont été développés dans le cas de systèmes principalement monocristallins. Or, dans la pratique, la plus part des systèmes F/AF sont polycristallins. On peut alors facilement imaginer les contributions diverses qui peuvent influencer le couplage d'échange tant les sources de frustration magnétique et de couplage sont nombreuses : défauts, rugosité d'interface, joints et taille de grains, distributions des anisotropies magnétiques locales... Face à ce nombre de degrés de libertés très grand, la solution la plus évidente afin d'être prédictif est l'utilisation de simulations micromagnétiques qui, il y a encore peu, ne pouvaient décrire le couplage d'échange AF à cause de contraintes numériques sur la conservation de la norme du vecteur d'aimantation. Ainsi, récemment, des premiers modèles micromagnétiques réalistes concernant la simulation de cycles d'hystérésis de bicouches F/AF [6, 7] ont été proposés, ces simulations reproduisant correctement les différents phénomènes cités précédemment (figure 2.a).

Nous avons aussi vu que les mesures statiques du champ d'échange impliquaient des phénomènes hystérétiques, c'est-à-dire des transformations irréversibles (parois AF, trainage magnétique...) et pouvaient alors tronquer les résultats observés, comme par exemple la définition du champ d'échange. En revanche, les mesures dynamiques viennent perturber localement l'aimantation en la déséquilibrant légèrement. On caractérise ainsi directement l'énergie magnétique (cf. I.1) et l'on révèle alors des mécanismes invisibles aux techniques de caractérisation usuelles (statiques), tels que l'anisotropie rotatoire. Il semblait donc logique d'adapter la dynamique de l'aimantation à ces modèles micromagnétiques statiques afin de les conforter et de les améliorer. Ce fut l'enjeu du post-doctorat de J. Saha dont la particularité est

de proposer un modèle numérique reproduisant le caractère polycristallin des AF, ce qui colle au plus près de la réalité. Nous avons collaboré sur ce projet en réalisant et caractérisant des bicouches FeCo/NiMn afin de les comparer aux simulations. Un exemple de résultats marquant faisant suite à ces travaux préliminaires est présenté figure 2.b. On y remarque un bon ajustement de l'expérience par le modèle pour deux épaisseurs différentes de FeCo ( $t_{FM}$ ). Ce travail fait l'objet d'une publication dans le journal Physical Review Letter [8]. Il ouvre également d'intéressantes perspectives comme l'étude de phénomènes mesurés encore mal compris et des comparaisons systématiques entre expérience et simulations. Puis, dans un second temps, il est envisagé de l'intégrer à des simulations micromagnétiques plus compliquées, notamment pour le domaine du transfert de spin, afin de prédire et d'étudier la contribution du couplage AF au comportement de futurs dispositifs y ayant recours, principalement les têtes de lectures de disque dur, les MRAM, les nano-oscillateurs à transferts de spin.

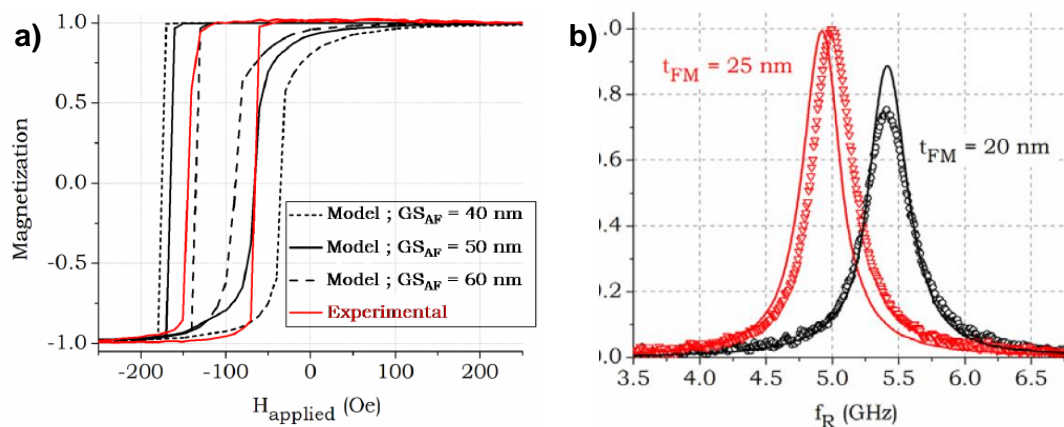


Figure 2 : a) Simulations micromagnétiques du couplage F/AF (FeCo(25nm)/NiMn) pour différente tailles de grains AF ( $GS_{AF}$ ), b) Correspondance en dynamique pour deux épaisseurs de FeCo ( $t_{FM}$ ).

### III) Antennes

Nous avons montré la grande difficulté que représente l'introduction de couches minces dans le domaine des antennes et qui demande de remettre en cause beaucoup d'acquis dès lors que l'on vise la miniaturisation. La démarche est tout juste engagée. Mais, les électrodes magnétiques que l'on a développées peuvent avoir d'autres utilités plus immédiates, dont voici certaines orientations envisagées :

- Le concept d'antenne filtrante, proposée par l'IETR et DCIS/SMOC : l'idée de base est une antenne large bande (plusieurs GHz), dont on veut supprimer une partie de la bande spectrale pour des raisons diverses. Le principe en est schématisé figure 3. Or, au cours du DRT de J.P Michel [9] et de la thèse de Y. Lamy [10], des lignes coplanaires de filtrage reposant sur la très forte absorption de l'onde à la fréquence de résonance ferromagnétique ont été réalisées (figure 3). Ainsi, en déposant l'électrode magnétique sur la piste d'accès à l'antenne, il est possible de filtrer une bande de fréquence pour toute émission ou réception de

l'antenne. Ici encore, le recours au couplage d'échange AF sera d'une grande aide pour choisir et/ou atteindre sans champ magnétique extérieur la fréquence d'absorption.

Ce travail se fait à l'heure actuelle en collaboration avec l'IETR de Rennes, dans le cadre de la thèse de Damien Rialet (Carnot « Radio Opportuniste »). L'étude par simulation numérique est prometteuse. Ce travail est mené par Damien Rialet, qui s'occupera également du test de l'antenne dont la réalisation est actuellement en cours au CEA-LETI.

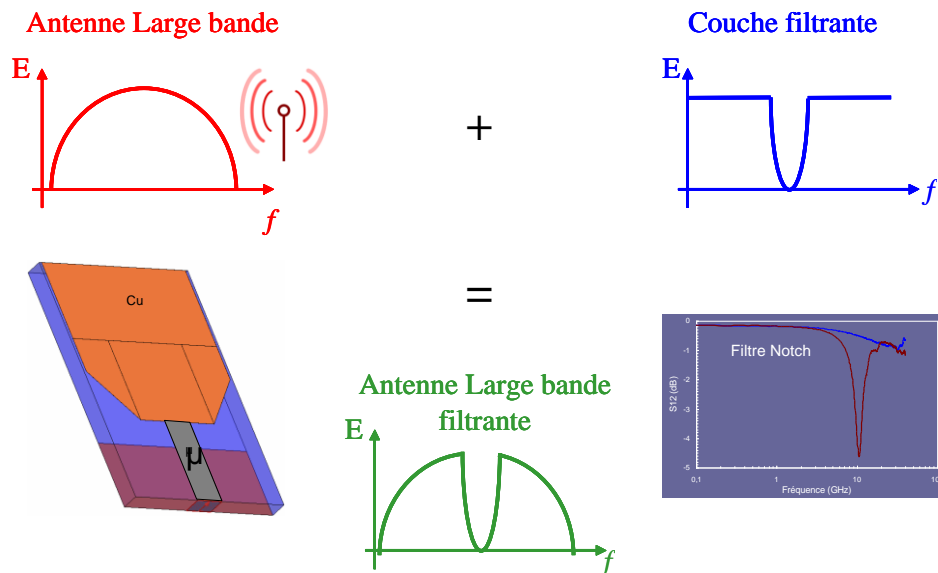


Figure 2 : Principe de l'antenne large bande filtrante ayant recours à la très forte absorption de l'onde à la résonance ferromagnétique.

- Une alternative à la miniaturisation : les travaux de simulation sur les antennes menés au DCIS/SMOC par François Grange ont clairement confirmé les rôles respectifs de  $\mu$  et  $\epsilon$  d'un milieu magnéto-diélectrique. Alors que la valeur élevée de  $\epsilon$  permet une miniaturisation théorique de l'antenne mais réduit aussi la bande passante, l'augmentation de  $\mu$  est favorable aux deux, et principalement à l'augmentation de cette bande passante. Or, les solutions de miniaturisation physique des antennes, en jouant sur leur topologie, réduisent très fortement leur bande passante, ce qui restreint leur utilité. Il existe donc un compromis optimal à déterminer quant au rapport  $\mu/\epsilon > 1$  qui permet de concilier miniaturisation et bande passante, et il serait certainement avantageux de combiner topologie et perméabilité afin d'obtenir des antennes miniatures.
- Une autre problématique aux antennes est la génération de lobes d'émissions secondaires, principalement dus aux réflexions du substrat. L'utilisation de surfaces à hautes impédances (surfaces à bande interdite), largement développé par la thématique des metamatériaux, est envisagée ici à l'aide de matériaux ferromagnétique périodiquement distribué, à perméabilité positive ou négative, et sera étudiée au cours de la thèse de F. Grange.

#### IV) Jonctions tunnels magnétiques (JTM)

Bien qu'éloignée de la thématique de la spintronique et en particulier des jonctions tunnels, ma thèse l'a rapidement rejoint, du fait d'une grande similitude des matériaux utilisés

et de cette thématique fortement présente à mon second laboratoire d'accueil, Spintec. En effet, si le STO monocristallin est prédit théoriquement comme l'une des futures barrière tunnel des jonctions magnétiques, la démonstration ici de la compatibilité de ce diélectrique en phase cristallisée avec des électrodes magnétiques à base de FeCo et de matériaux AF est un préambule aux futures jonctions. Ceci a donné lieu au démarrage d'une thèse au laboratoire (Emeline Hassen), et au dépôt d'un brevet [1].

Je rappelle ici que les jonctions tunnel magnétiques (JTM) sont une des applications phare de la l'électronique de spin. Les JTM consistent en deux électrodes magnétiques séparées par une très fine couche d'isolant. En fonction de l'orientation relative des aimantations couches ferromagnétiques, parallèles ou antiparallèles, on peut avoir une très forte variation de résistance (TMR) de l'empilement. Le principe en est schématisé figure 4. Elles sont aujourd'hui considérées comme les prochaines générations de mémoire RAM (MRAM), mais aussi utilisées pour d'autre dispositifs tel que les nano oscillateurs à transfert de spin.

Les barrières tunnel à l'état de l'art sont aujourd'hui en MgO cristallisé, et permettent d'obtenir des TMR > 100 % à température ambiante. Toutefois, afin de réduire les consommations énergétiques pour les différentes études et applications auxquelles sont destinées les JTM, il est nécessaire d'avoir un produit résistance-surface (RA) le plus faible possible ( $\sim 1 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ ). Pour cela, il faut réduire très fortement les épaisseurs des barrières tunnel (< 1 nm), ce qui d'une part constitue une grande difficulté technologique et d'autre part affecte fortement les valeurs de TMR.

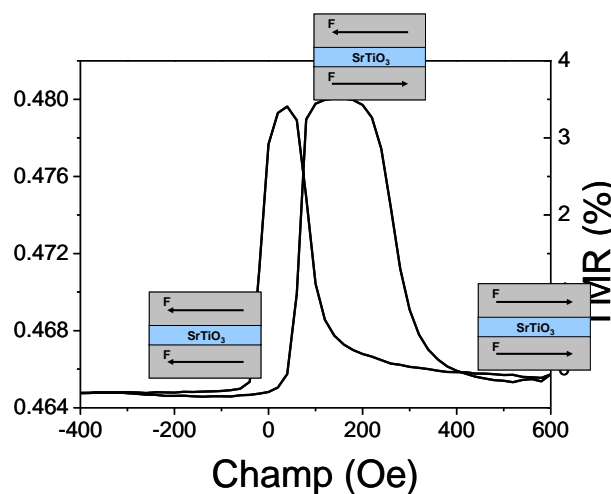


Figure 1 : Mesure « préliminaire » d'une jonction tunnel magnétique FeCo/SrTiO<sub>3</sub>/FeCo/NiMn.

Or, des études théoriques ont montré que le STO permettrait d'augmenter la TMR comparativement à l'état de l'art actuel (MgO cristallisé), et également de diminuer le RA. Par conséquent, il est aujourd'hui envisagé comme une future génération de barrière tunnel pour les JTM. Nous avons donc naturellement réalisé des jonctions tunnels très « préliminaires » sur la base de capacités MIM combinant des électrodes magnétiques développés au cours de cette thèse. Notons que l'une des électrodes doit présenter un caractère plus rigide que l'autre afin de faire office de « couche piégée ». Un tout premier

résultat indique 4 % de TMR dans des conditions qui ne sont absolument pas optimisées, ce qui est déjà comparable aux meilleurs résultats de la littérature [11].

Pour obtenir les valeurs prédites par la théorie, il faut encore optimiser l'état de cristallinité du STO aux très faibles épaisseurs. Or, à l'heure actuelle aucune méthode hors épitaxie (MBE ou PLD) ne le permet avec un empilement MTJ transférable à terme à l'industrie. C'est pourquoi le travail développé au cours de cette thèse sur la compatibilité thermique d'électrodes magnétiques avec une couche de SrTiO<sub>3</sub> polycristalline élaborée par IBS peut lever un verrou très important pour cette application. La solution que nous proposons est confortée aujourd'hui par le dépôt d'un brevet [1] et le démarrage d'une nouvelle thèse (E. Hassen) couplée au projet ANR CRYSTO.

## Références

- [1] Kevin Garello, Marie-Claire Cyrille, Bernard Dieny, Olivier Redon, et Bernard Viala, “*Procédé pour la réalisation d'une jonction tunnel magnétique et jonction tunnel magnétique ainsi obtenue*”, Brevet N° E.N. 08 58469
- [2] Brevet Confidentiel N° E.N. 09 03549
- [3] K. Garello, E. Bènevent, C. Dubarry, and B. Viala, “*Film mince à permittivité et perméabilité élevées*”, Brevet N° E.N. 08 58470
- [4] B. Orlando, B. Viala, S. Henz, «*Inductance variable intégrée contrôlée piézoélectriquement et procédé de fabrication d'une telle inductance* », Brevet N° E.N. 06 07966
- [5] M. Bibes and A Barthélémy, “*Multiferroics: Towards a magnetoelectric memory*”, Nature Materials, Vol. 7, p. 425 (2008)
- [6] J. Saha and R. H. Victora, “*Large scale micromagnetic simulation for the exchange interaction between a polycrystalline antiferromagnet and a ferromagnet*”, Phys. Rev. B, Vol. 70, p. 104433 (2006)
- [7] J. Saha, J.S Parker, B. Bolon, A. Abin-Fuentes, C. Leighton, R.H. Victora, “*Comparison between micromagnetic simulation and experiment for the  $\alpha/\gamma$ -Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> exchange-biased system*”, J. Appl. Phys., Vol. 102, p. 73901 (2007)
- [8] J. Saha, K. Garello, A. Marty, N. Vukadinovic and B. Viala, “*Induced anisotropies in a ferromagnet coupled to a polycrystalline antiferromagnet* ” Phys. Phys. Lett. (soumis 01/09/09)
- [9] Yann Lamy, «*Matériaux magnétiques doux hétérogènes à combinaison d'aimantation élevée et de grande anisotropie utilisant le couplage d'échange, pour applications microondes* », PhD thesis, Université de Limoges (2006)
- [10] Jean-Philippe Michel, «*Lignes coplanaires ferromagnétiques sur silicium pour applications microondes* », Diplôme de Recherche Technologiques, Université Joseph Fourier de Grenoble (2006)
- [11] K. Oguz, J.M.D Coey, “*Room-temperature magnetoresistance in CoFeB/STO/CoFeB magnetic tunnel junctions*”, J. Mag. Mag. Mat., Vol. 321, p. 1009-1011 (2009)

# **Production scientifique**

## **Articles de revue:**

- “*Magneto-dielectric thin film heterostructure with high permeability and permittivity*”, K. Garello, E. Bènevent, B. Viala, IEEE Tans. Mag., Vol. 45, p. 4325-4328 (22/09/09)
- “*High permeability and high permittivity heterostructures for the miniaturization of radiofrequency components*”, E. Bènevent, K. Garello, D. Cros, B. Viala, International Journal of Microwave and Wireless Technologies, Vol. 1, p. 455-460 (12/2009)
- “*Temporal coherence of MgO based magnetic tunnel junction spin torque oscillator*”, D. Houssamedine, K. Garello et. Al, Phys. Rev. Lett., Vol. 102, p. 257202 (22/06/09)
- “*Induced anisotropies in a ferromagnet coupled to a polycrystalline antiferromagnet*” Phys. Rev. B., J. Saha, K. Garello, A. Marty, N. Vukadinovic and B. Viala, Vol.81, p. 024417 (22/01/10)

## **Brevets :**

- “*Film mince à permittivité et perméabilité élevées*”, K. Garello, E. Bènevent, C. Dubarry, and B. Viala, Brevet N° E.N. 08 58470
- “*Corps main gauche, dispositif de guidage d’ondes et antennes utilisant ce corps*”, K. Garello, E. Bènevent, and Bernard Viala, Brevet N° E.N. 09 03549
- “*Procédé pour la réalisation d’une jonction tunnel magnétique et jonction tunnel magnétique ainsi obtenue*”, K. Garello, Marie-Claire Cyrille, Bernard Diény, Olivier Redon, and Bernard Viala, Brevet N° E.N. 08 58469

## **Conférences :**

- Intermag 2009, Sacramento (1 oral + 2 contributions)
- JNM 2009, Grenoble (1 oral + 2 contributions)
- Eucap 2009, Berlin (1 contribution)
- Metamat06, Marrakesh (visiteur)







## Matériaux magnéto-diélectriques en couches minces à forte perméabilité et à forte permittivité pour les microondes

Nous faisons, actuellement, face au besoin d'une rupture technologique pour les composants RF qui devront s'adapter aux futurs protocoles de communication multi-standards ; ce que l'on appelle encore « la radio opportuniste ». En effet, en dépit d'une réduction de taille importante des blocs RF avec l'émergence des composants passifs intégrés (inductances, capacités), les antennes et les filtres de bandes conservent des dimensions trop importantes. Une rupture possible passe par l'émergence de nouveaux matériaux fonctionnalisés faisant suite aux progrès spectaculaires des techniques de dépôt en couches minces ou de chimie douce pour nanocomposites. Ainsi, de nouvelles hétérostructures magnétoélectriques et/ou piézomagnétiques peuvent être à présent intégrées sur technologies silicium dont les propriétés combinées renouvellent la magnétoélectricité volumique historique.

Le but de ce travail consiste en la manipulation de deux grandeurs électromagnétiques prépondérantes : la perméabilité ( $\mu$ ) et la permittivité ( $\epsilon$ ), qui sont essentielles à la miniaturisation de systèmes résonants et/ou rayonnants. En effet, leur taille est dépendante de la longueur d'onde ( $\lambda$ ) du signal qui les éclaire, et  $\lambda$  est inversement proportionnelle à la racine carrée du produit  $[\mu \times \epsilon]$  du milieu traversé. Les technologies actuelles de dépôt multicouches permettent d'envisager une telle manipulation par le biais de combinaisons de couches minces magnétiques et diélectriques. Cependant, il reste une difficulté rédhitoire à surmonter : la combinaison des phases ferromagnétiques à fort- $\mu$  et pérovskites à fort- $\epsilon$  dont les températures de fabrication demeurent incompatibles. En effet, les composés pérovskites ont une température de cristallisation supérieure à 600°C, alors que les composés ferromagnétiques doux voient leurs propriétés se dégrader dès 200°C. L'objectif de ce travail est de résoudre cette incompatibilité.

Dans ce document, nous proposons donc de combiner des films minces de SrTiO<sub>3</sub> à des électrodes magnétiques couplées par échange antiferromagnétique (F/AF) en nous appuyant sur deux travaux antérieurs consacrés à : (i) SrTiO<sub>3</sub> cristallisé ( $\epsilon_r=100$ ) compatible thermiquement avec la technologie CMOS pour des capacités MIM et (ii) FeCo à très forte aimantation couplé par échange AF pour des applications inductives à haute fréquence (> 5 GHz). Premièrement, l'optimisation de chaque matériau est décrite afin d'obtenir une température de procédé  $\leq 300^\circ\text{C}$ . Puis, la combinaison de ces deux matériaux est détaillée et une première hétérostructure à fort- $[\mu, \epsilon]$  ayant une température de procédé de 260°C est présentée, avec des propriétés microondes extraordinaires. Nous montrons également qu'il est possible de régler le rapport  $\mu/\epsilon$ , c'est-à-dire l'impédance caractéristique du milieu ( $Z_c$ ), ce qui mettra le matériau au cœur de la conception des dispositifs comme un élément fonctionnalisable à part entière ( $\mu$ ,  $\epsilon$ ,  $Z_c$ ). Nous étudions ensuite l'interaction de cette hétérostructure avec des guides d'ondes coplanaires et des antennes. Il ressortira de ces travaux que le couplage onde-matière est fondamentalement différent dans le cas des structures guidées et non guidées, menant à des potentiels de miniaturisation très différents au regard du produit  $[\mu \times \epsilon]$ . Ainsi, nous présentons d'une part de larges potentiels de la miniaturisation pour des structures  $\frac{1}{2}$  et  $\frac{1}{4}$  d'ondes ( $\geq 40\%$ ), qui sont d'autant plus mis en évidence que l'on augmente le nombre d'alternance du milieu ou que l'on utilise des topologies de guide d'onde originales. D'autre part, nous montrons la possibilité d'augmenter significativement la bande passante des antennes à défaut d'une miniaturisation effective de l'élément rayonnant.

### Magneto-dielectric thin films materials with high permeability and high permittivity for microwaves

Nowadays, telecom faces severe technological obstacles to meet the requirements for full multi-standard communication systems such as smart phones. This drives an extensive research from signal processing to circuits supported by the "Opportunist Radio" scheme. Indeed, despite significant size reductions of RF blocks with the emergence of integrated passive components (inductors, capacitors), antennas and band-filters remain far oversized. A possible breakthrough goes through new functionalized thin film materials. Such a new class of composite materials has been made possible with the spectacular progress of the multilayer deposition technique or soft chemistry for nanocomposites. Thus, new magnetolectric and/or piezomagnetic heterostructures can be now integrated with silicon technologies which combined-properties renew with the historical bulk magnetolectricity.

In this work, our goal is the manipulation of the two main electromagnetic quantities: the permeability ( $\mu$ ) and the permittivity ( $\epsilon$ ), which are essential for miniaturizing microwave resonant and/or radiating structures. Indeed, their dimension depends on the wavelength ( $\lambda$ ) of the signal which propagates, and  $\lambda$  is inversely proportional to the square root of the product  $[\mu \times \epsilon]$  of the medium. Current multilayer deposition techniques allow considering this manipulation by the means of a combination of magnetic and dielectric thin films. However, a major obstacle remains to overcome as high- $\mu$  ferromagnetic materials and high- $\epsilon$  perovskite materials require temperatures which are fully incompatible. Indeed, perovskite materials have crystallization temperatures superior to 600°C while soft ferromagnetic materials are limited up to 200°C. It is the main objective of this work to solve this incompatibility.

Here, we propose to combine SrTiO<sub>3</sub> thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic (F/AF) exchanged coupled magnetic electrodes based on two previous works: (i) SrTiO<sub>3</sub> CMOS-compatible deposition for MIM capacitors and (ii) exchange coupled FeCo materials for RF inductors (> 5GHz). First, the optimization of each material is described in order to match a temperature of  $\leq 300^\circ\text{C}$ . Then, the assembly of the two materials is detailed and a first high- $[\mu, \epsilon]$  heterostructure with a process temperature of 260°C is shown with outstanding microwave properties. It is also shown that it is possible to adapt the  $\mu/\epsilon$  ratio, in other word the characteristic impedance of the medium ( $Z_c$ ), which indicates the material properties ( $\mu$ ,  $\epsilon$  and  $Z_c$ ) being part of the adjusting parameters for the design of the devices. Next, we study the interactions of such medium with coplanar waveguides and antennas. We conclude that the wave-to-medium coupling is fundamentally different in the case of guided structures and radiating structures, leading to very different potentials of miniaturization regarding the product  $[\mu \times \epsilon]$ . Thus, we indicate a large potential of miniaturization for  $\frac{1}{2}$  and  $\frac{1}{4}$  wavelength structures ( $\geq 40\%$ ) if increasing the number of alternations of the medium or using original waveguide topologies. On the other hand, we show a significant improvement of the bandwidth for antennas being possible by default of an effective miniaturization of the radiating element.