Dynamique de l'aimantation étudiée par rayonnement synchrotron : vers l'électronique de demain

Jan Vogel⁽¹⁾, Stefania Pizzini⁽¹⁾, Vojtech Uhlír⁽¹⁾, Nicolas Rougemaille⁽¹⁾,
Marlio Bonfim⁽¹⁾, Vincent Cros⁽²⁾, Alain Fontaine⁽¹⁾, Julio C. Cezar⁽³⁾,
Nicholas B. Brookes⁽³⁾, Fausto Sirotti⁽⁴⁾ (fausto.sirotti@synchrotron-soleil.fr)

(1) Institut Néel, CNRS et UJF, 25 rue des Martyrs, 38042 Grenoble

(2) Unité Mixte de Physique CNRS/Thalès, 91767 Palaiseau

(3) European Synchrotron Radiation Facility, BP 200, 38043 Grenoble

(4) Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, Saint-Aubin, 91192 Gif-sur-Yvette

La course à la miniaturisation pour augmenter la densité de stockage de données en utilisant des nanostructures magnétiques, nécessite de maîtriser les processus de retournement de l'aimantation dans les matériaux.

Grâce aux propriétés du rayonnement synchrotron, nous pouvons effectuer des images des domaines magnétiques dans des fils de 100 nm d'épaisseur, avec sensibilité à l'élément chimique et une résolution temporelle de quelques dizaines de picosecondes. Les processus dynamiques de l'aimantation ont été étudiés pendant l'injection d'un courant suffisant pour déplacer les parois des domaines magnétiques par transfert de *spin*.

Le renversement de l'aimantation, c'est-à-dire son changement de direction d'un état stable à un autre sous l'influence d'un champ magnétique ou d'un courant électrique, ou bien par activation thermique, peut avoir lieu sur une large gamme de temps, allant de la femto-seconde (10^{-15} s) jusqu'à plusieurs années. Dans des aimants ou des couches magnétiques macroscopiques, le retournement d'un état magnétiquement saturé se fait par germination d'un ou de plusieurs domaines magnétiques d'aimantations opposées à l'aimantation initiale, puis par leur croissance par propagation des parois des domaines. Ces processus ont lieu à des échelles de temps relativement longues, supérieures à la nanoseconde (10^{-9} s). Un retournement plus rapide, de l'ordre de 10^{-10} s, peut être obtenu dans des micro et nanostructures magnétiques, en utilisant des impulsions de champ magnétique ou de courant électrique ayant une durée et une direction bien ajustées. Ces impulsions induisent une précession^(a) de l'aimantation autour du champ magnétique, avec une vitesse angulaire donnée par la fréquence de Larmor^(b). Le temps de précession a longtemps été considéré comme une limite fondamentale pour le renversement de l'aimantation. Cependant, il a été montré il y a quinze ans qu'un renversement encore plus rapide, en un temps de l'ordre de la picoseconde (10^{-12} s) ou moins, peut être induit par des impulsions laser ultra-courtes [1].

Comprendre les effets physiques à l'origine de ces phénomènes constitue l'un des grands défis du magnétisme moderne. Ces recherches visent aussi l'exploitation de ce renversement ultrarapide pour les applications, notamment le stockage magnétique des données.

Quelles méthodes ?

Pour étudier des phénomènes très rapides, il faut disposer d'une sonde au moins aussi rapide. La sonde de choix pour la plupart des études de dynamique ultrarapide a ainsi été naturellement la lumière cohérente émise par un laser, qui peut délivrer des impulsions d'une durée de quelques femtosecondes. Une autre source d'impulsions de photons, mais à l'échelle temporelle des picosecondes, est disponible dans les centres de rayonnement synchrotron. Son utilisation pour les études de la dynamique de l'aimantation a d'abord été développée en France, au LURE et à l'ESRF, à la fin des années 1990.

Le rayonnement synchrotron possède plusieurs atouts importants pour ces études. En particulier :

- la forte interaction entre les rayons X mous (d'énergie inférieure à 2000 eV) et la matière et la grande brillance des sources de rayonnement synchrotron permettent de mesurer de très faibles quantités d'échantillons, jusqu'à une fraction de couche atomique ;

2. Schéma des mesures pompe-sonde, où des impulsions de courant appliquées à l'échantillon (en bleu) sont synchronisées avec les impulsions de rayons X (en noir). La dynamique de l'aimantation est obtenue en changeant le délai Δt entre les impulsions de courant et les impulsions de photons.

- l'énergie des rayons X peut être « accordée » aux seuils d'absorption spécifiques à chaque élément, ce qui permet une sélectivité chimique (fig. 1). Il est donc possible d'accéder séparément à la dynamique d'aimantation des différentes couches magnétiques dans des empilements complexes ou aux différents éléments composant un alliage.

1. Le dichroïsme magnétique des rayons X.

La mesure de la variation de l'absorption d'un matériau magnétique avec la polarisation de la lumière donne accès à la direction de l'aimantation locale et au moment magnétique de chaque élément chimique dans le matériau. En inversant la direction relative de la polarisation de la lumière et de l'aimantation, on mesure deux spectres d'absorption différents, comme montré dans la figure pour les seuils $L_{2,3}$ (transitions électroniques $2p \rightarrow 3d$) du cobalt. La différence entre les deux spectres, et le rapport en intensité entre les seuils L_2 et L_3 , permettent d'obtenir les moments magnétiques orbital et de *spin* par des règles de somme.

Cependant, la durée des impulsions de rayons X provenant des anneaux de stockage est relativement longue (quelques dizaines de picosecondes) comparée aux impulsions laser. Récemment, les efforts effectués en matière de techniques synchrotron ont permis de réduire cette durée, rendant les rayons X complémentaires à la lumière laser pour les études de dynamique. Par ailleurs, la sélectivité chimique que les techniques synchrotron autorisent est unique.

À titre d'exemple, la combinaison de ces propriétés a permis de démontrer récemment que les renversements ultra-rapides des moments de Gd et de Fe dans les composés ferrimagnétiques GdFeCo se font à des échelles de temps très différentes [2], un résultat inattendu puisqu'en conditions statiques un fort couplage existe entre ces moments.

Via leur dichroïsme circulaire magnétique (XMCD, fig. 1), les rayons X permettent aussi d'obtenir séparément les contributions orbitale et de *spin* du moment magnétique, qui nous renseignent en particulier sur les origines microscopiques de l'anisotropie magnétique dans les couches minces. Cette possibilité unique a révélé que les dynamiques des moments orbitaux et de *spin* peuvent être très différentes pendant l'application d'impulsions laser ultra-courtes, indiquant un changement très rapide de l'anisotropie magnétocristalline [3].

L'imagerie magnétique utilisant les rayons X permet d'atteindre une très

bonne résolution spatiale, bien supérieure à celle obtenue avec des sources laser. En effet, la résolution d'une microscopie photonique est *a priori* limitée par la longueur d'onde des photons utilisés, qui est de l'ordre de plusieurs centaines de nanomètres pour la lumière visible, mais de quelques nanomètres au plus pour les rayons X. En pratique, la résolution spatiale des microscopes à rayons X est limitée soit par la taille minimale du faisceau en mode balayage (microscope de rayons X par balayage en transmission ou STXM), soit par l'optique électronique si les photoélectrons émis par l'échantillon sont utilisés (microscope à émission de photoélectrons ou PEEM). Cette résolution peut descendre à 15–20 nm pour les meilleurs instruments.

Afin d'effectuer des mesures résolues en temps avec les rayons X, on utilise le mode pompe-sonde en synchronisant les impulsions de courant, qui ont une durée de quelques nanosecondes, avec les impulsions de photons X d'environ 50 ps qui fixent la résolution temporelle. La méthode est illustrée dans la figure 2. La dynamique de l'aimantation de l'échantillon est déduite d'une série d'images obtenues en modifiant le délai temporel entre la pompe et la sonde. À noter qu'il faut moyenner sur environ 10^8 à 10^9 impulsions pour obtenir des images avec un rapport signal sur bruit suffisant, ce qui donne un temps d'acquisition de l'ordre d'une minute pour chaque image.

>>> Dynamique de l'aimantation induite par des impulsions de courant dans les nanofils FeNi/Cu/Co

Notre sujet d'étude est la dynamique de l'aimantation de nanofils magnétiques induite par des impulsions de courant électrique qui les traversent. Cette dynamique a suscité un grand intérêt de la communauté scientifique depuis une quinzaine d'années.

Dans un matériau ferromagnétique, les libres parcours moyens des électrons de conduction de *spin* majoritaire et minoritaire sont différents. Un courant électrique circulant dans un tel matériau devient donc naturellement polarisé en *spin* [4]. Quand ce courant d'électrons polarisés traverse une région de l'échantillon où la direction d'aimantation locale varie, comme c'est le cas pour une paroi de domaines, la direction de polarisation des électrons de conduction doit s'adapter à cette nouvelle direction locale de l'aimantation, conduisant à un changement de moment angulaire. La conservation du moment angulaire total impose donc un transfert du moment angulaire des électrons de conduction vers l'aimantation locale, induisant un couple de « transfert de *spin* » [4] (fig. 3).

Pour les parois magnétiques confinées dans des nanostructures comme les nanofils magnétiques, ce couple peut conduire à un déplacement des parois sous l'effet du courant, en général dans la direction du flux d'électrons (opposé au courant électrique). La manipulation de l'aimantation par un courant polarisé en *spin* pourrait conduire au développement de nouveaux concepts ne nécessitant pas l'utilisation de champs magnétiques, pour les mémoires magnétiques, les systèmes magnétologiques ou encore les oscillateurs radiofréquence.

Un grand nombre de questions restent ouvertes concernant l'interaction entre le courant et l'aimantation locale, notamment celle du rôle de la déformation de la structure interne des parois de domaines sous l'influence du courant. Pour étudier en détail cet effet, des mesures microscopiques doivent être effectuées pendant l'application des impulsions de courant, dont la durée est typiquement de l'ordre de quelques nanosecondes. Ceci est possible en combinant la structure temporelle du rayonnement synchrotron et la microscopie électronique PEEM (microscopie à émission de photoélectrons), que nous utilisons et développons à l'Institut Néel depuis plusieurs années. En microscopie PEEM, les électrons émis par la surface d'un échantillon illuminé par des rayons X sont utilisés pour obtenir

une image de l'absorption X locale. La combinaison des techniques PEEM et XMCD (dichroïsme magnétique) permet d'obtenir des images de nanostructures magnétiques, avec une résolution spatiale pouvant descendre à 20 nanomètres.

Quel matériau serait le plus prometteur ?

La plupart des études initiales apparues dans la littérature se sont focalisées sur le déplacement de parois dans des nanofils de $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$ (permalloy), un matériau de choix en raison de sa faible coercitivité associée à un faible piégeage des parois par des défauts. Néanmoins, il a été montré dès 2003 que dans les tricouches FeNi/Cu/Co, connues pour leurs propriétés de magnétorésistance géante [4], les parois dans la couche de FeNi pouvaient être déplacées avec un courant seuil bien plus faible que dans les couches simples de FeNi [5]. Ceci est un atout majeur pour les applications en spintronique, où la consommation d'énergie et la stabilité thermique sont des questions essentielles. En général, ce qui est recherché dans les dispositifs est un courant seuil le plus faible possible, associé à une mobilité importante des parois (typiquement, des vitesses supérieures à 100 m/s pour une densité de courant inférieure à 10^{12} A/m²).

3. Déplacement d'une paroi magnétique par transfert de *spin*. Une tension appliquée aux bornes d'un nanofil contenant une paroi de domaines (rectangle vert) induit un flux d'électrons de la gauche vers la droite. Ces électrons se polarisent en passant le premier domaine magnétique, avec une direction de *spin* parallèle à la direction locale de l'aimantation (flèches noires). En traversant la paroi de domaine, la direction de *spin* de ces électrons doit se modifier pour s'aligner avec l'aimantation locale de l'autre côté (à droite) de la paroi. Le moment angulaire (de *spin*) des électrons est donc modifié en passant la paroi, et est transféré à l'aimantation locale dans la paroi pour satisfaire la loi de conservation du moment angulaire total. Ce transfert conduit à une rotation de l'aimantation dans la paroi (flèches grises), puis à un déplacement de celle-ci (tirets gris) dans la direction du flux d'électrons.

Les tricouches FeNi/Cu/Co semblaient donc un système très prometteur, qui a stimulé le développement de nos dispositifs expérimentaux à l'ESRF d'abord, puis à SOLEIL. Le but de nos mesures était de fournir une vue microscopique du déplacement des parois dans ces systèmes – qui n'est pas obtenue avec les mesures électriques effectuées auparavant – pour mieux comprendre les mécanismes conduisant à une plus grande efficacité du couple de transfert de *spin* dans ces tricouches. La microscopie PEEM, comparée par exemple à la microscopie Kerr^(c), présente des avantages importants pour cette étude : i) sa très grande sensibilité au magnétisme permet d'imager aisément les couches magnétiques très minces (5 nm) de nos échantillons ; ii) sa bonne résolution spatiale permet d'observer des nanofils étroits (moins de 400 nm) ; iii) la sélectivité chimique du PEEM, associée au dichroïsme magnétique, permet l'observation des structures en domaines dans les couches de FeNi et de Co, et donc d'élucider l'influence du cobalt sur la propagation des parois dans la couche de FeNi.

La configuration typique d'une paroi de domaines dans une couche de FeNi d'épaisseur 5 nm et de largeur 400 nm, obtenue par simulations micromagnétiques, est illustrée dans la figure 4. Dans nos premières expériences, nous avons

étudié le déplacement des parois induit par des impulsions de courant d'amplitude et de durée variables, en imageant la structure en domaines avant et après les impulsions de courant. Un exemple est donné dans la figure 5. Ces mesures quasi statiques ont confirmé que les vitesses de propagation des parois du FeNi sont, pour une densité de courant donnée, bien plus élevées dans ces tricouches que dans les monocouches, et peuvent atteindre 600 m/s [6].

Des mesures en dynamique pour identifier le mécanisme de transfert de *spin* le plus efficace

Pour comprendre plus en détail les mécanismes physiques responsables de la grande efficacité du transfert de *spin* dans les tricouches, il est indispensable de savoir comment la distribution locale de l'aimantation est modifiée *pendant* les impulsions de courant, une information très difficile à obtenir sans la résolution temporelle et la sensibilité de l'imagerie magnétique PEEM.

La figure 6 montre une séquence d'images prises pendant l'application d'impulsions de courant bipolaires à une nanobande de FeNi/Cu/Co en forme de zigzag. Les délais temporels entre le début des impulsions de courant et les paquets de photons sont indiqués dans la figure 6f, avec la forme des impulsions

de courant. Avant l'impulsion de courant, le contraste magnétique dans la couche de FeNi est essentiellement homogène, et l'aimantation est orientée selon la direction des flèches blanches dans la figure 6a. Pendant l'impulsion de courant, le contraste magnétique est très différent, et opposé pour les deux orientations de la bande (fig. 6b). De même, le contraste est opposé pour les directions opposées du courant électrique (comparer les figures 6b et 6d). Ces changements de contraste sont compatibles avec une réorientation de l'aimantation pendant l'impulsion de courant, selon les directions indiquées par les flèches dans la figure 6.

L'origine de cette réorientation de l'aimantation pendant les impulsions de courant est le champ d'Ørsted (ou champ d'Ampère)^(d) induit par le courant électrique et étudié dans les cours de magnétisme dès le lycée. À cause de la faible résistance électrique du cuivre par rapport à celles du FeNi et du cobalt, le courant dans ces nanofils circule principalement dans la couche de cuivre. Ce courant induit un champ magnétique net de directions opposées dans les couches de FeNi et de cobalt (fig. 6f). La direction de ce champ est perpendiculaire au courant et donc transverse à la bande. L'expérience, initialement conçue pour suivre le déplacement des parois, a

»»»

4. Simulation micromagnétique d'une paroi magnétique transverse dans une bande de FeNi d'épaisseur 5 nm et de largeur 400 nm.

5. Images PEEM de la structure en domaines magnétiques avant (a) et après (b) l'application d'une impulsion de courant, avec une durée de 2,5 ns et une densité de courant de $3,3 \cdot 10^{11}$ A/m². Le contraste magnétique dans ces images, obtenues du rapport entre deux images prises avec les deux polarisations circulaires opposées, est proportionnel au cosinus de l'angle entre la direction du faisceau de rayons X et l'aimantation locale. Les nanofils ont été lithographiés en forme de zigzags afin de pouvoir induire une paroi de domaines dans les angles, en appliquant un champ magnétique transverse. Le déplacement d'une paroi, induit par une impulsion de courant, est donné par la distance entre les deux flèches blanches sur la figure b.

6. Images de la configuration magnétique dans des bandes FeNi(5nm)/Cu(5nm)/Co(5nm) d'une largeur de 400 nm, mesurées en microscopie PEEM résolue en temps. Les rayons X ont une polarisation circulaire et sont accordés en énergie au seuil d'absorption du nickel. La structure de la tri-couche est montrée dans la figure f, où les couches magnétiques de cobalt et de FeNi sont en vert, et la couche non magnétique de cuivre en blanc. Le sens du courant dans la couche de cuivre est indiqué par les symboles $\otimes$ et $\odot$. Les images sont obtenues avant (a) et pendant (b-e) l'application d'une impulsion de courant bipolaire (courbe violette de la figure f). La direction d'aimantation des bandes magnétiques est donnée par le niveau de gris (noir vers le haut, blanc vers le bas). La direction du champ d'Oersted pendant les impulsions de courant est transverse aux bandes, comme indiqué par les flèches dans les deux schémas de la figure f. Le contraste magnétique montre que ce champ induit une rotation de l'aimantation comme indiqué dans les figures (b) et (d), avec un sens de rotation opposé pour des directions de courant opposées.

>>>

permis d'identifier l'apparition et l'influence du champ d'Oersted [7]. Ce champ stabilise les parois magnétiques transverses et retarde l'apparition de turbulences magnétiques lors du déplacement de la paroi, permettant ainsi d'atteindre des vitesses de déplacement plus élevées.

Ces premières observations directes de la dynamique de l'aimantation dans la couche de FeNi pendant les impulsions de courant, obtenues grâce à la sensibilité chimique et aux résolutions spatiale et temporelle de l'imagerie PEEM avec des rayons X, nous ont permis de comprendre l'importance du champ d'Oersted et des interactions magnéto-statiques entre couches dans la propagation de parois dans les nanofils FeNi/Cu/Co.

Nous travaillons actuellement à l'optimisation de ces nanostructures, dans le but d'augmenter encore les vitesses de déplacement des parois et de réduire les densités de courant seuil. Récemment, nous avons utilisé cette technique pour démontrer que des parois de domaines dans un système à aimantation perpendiculaire au plan, le Pt/Co/AlO_x, se déplacent sans inertie, c'est-à-dire qu'elles se propagent dès qu'une impulsion de courant est appliquée et s'arrêtent immédiatement à la fin de celle-ci [8].

Perspectives

La durée des impulsions de quelques dizaines de picosecondes disponibles dans le mode de fonctionnement standard à SOLEIL et à l'ESRF, permet une étude microscopique détaillée des processus dynamiques à l'œuvre dans des nanofils parcourus par un courant électrique. Dans le but d'atteindre une dynamique plus rapide, la modification de l'aimantation doit être induite par des impulsions laser ultracourtes et la durée des impulsions des rayons X doit aussi être réduite pour atteindre l'ordre de la femtoseconde (fs). Des expériences à l'échelle temporelle de 100 fs sont réalisées en découpant le faisceau d'électrons des sources de rayonnement synchrotron ("femto-slicing", voir p. 12). Mais si ce découpage améliore la résolution temporelle, il diminue considérablement le flux de photons et ne permet pas d'atteindre la résolution spatiale dans un temps raisonnable.

Une réponse pourrait venir des sources de rayonnement de « quatrième génération », de type laser à électrons libres, qui fournissent actuellement des impulsions de rayons X d'une durée de quelques femtosecondes et d'une intensité inégalée. Les premières expériences visant à étudier la dynamique de l'aimantation montrent qu'il pourrait être envisageable d'effectuer de l'imagerie par holographie des rayons X [9] en *single-shot*, avec une seule impulsion de rayons X. ■

- (a) Modification de l'axe de rotation d'un corps, ici le *spin* de l'électron.
- (b) Fréquence de rotation du *spin*.
- (c) Dans un microscope Kerr, la lumière incidente passe d'abord par un filtre polariseur, puis est réfléchi par l'échantillon, traverse un analyseur de polarisation, avant d'entrer dans un microscope optique ordinaire.
- (d) Champ magnétique produit à partir d'un conducteur parcouru par un courant.

Remerciements

Les résultats montrés ici ont été obtenus sur les lignes de lumière ID08 à l'ESRF et TEMPO à SOLEIL. Nous remercions toutes les personnes qui nous ont aidé par des développements techniques, une participation aux expériences ou des discussions, en particulier E. Wagner, D. Lepoittevin, T. Fournier, T. Crozes, J. Camarero, E. Jimenez, O. Fruchart, L. Ranno, J.-C. Toussaint, G. Gaudin et C. Tieg. Ce travail a été partiellement soutenu par le projet ANR-07-NANO-034 "Dynawall".

Références

- 1• www-ipcms.u-strasbg.fr/spip.php?article266&lang=en
- 2• I. Radu *et al.*, *Nature* **472** (2011) 205.
- 3• C. Boeglin *et al.*, *Nature* **465** (2010) 458.
- 4• A. Fert, *Revue de la Physique* **15** (2009) 5 ; B. Dieny, *ibid.*, **16** (2009) 6.
- 5• J. Grollier *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **83** (2003) 509.
- 6• V. Uhlir *et al.*, *Phys. Rev. B* **81** (2010) 224418.
- 7• V. Uhlir *et al.*, *Phys. Rev. B* **83** (2011) 020406.
- 8• J. Vogel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 247202.
- 9• T. Wang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 267403.