



HAL
open science

Contribution à l'étude de la diffusion et du transfert de spin à une interface ferromagnétique-normal mesurés sur des nanofils électrodéposés

Quang Anh Nguyen

► To cite this version:

Quang Anh Nguyen. Contribution à l'étude de la diffusion et du transfert de spin à une interface ferromagnétique-normal mesurés sur des nanofils électrodéposés. Engineering Sciences [physics]. Ecole Polytechnique X, 2009. English. NNT: . pastel-00005117

HAL Id: pastel-00005117

<https://pastel.hal.science/pastel-00005117>

Submitted on 20 May 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité

PHYSIQUE

Présentée par :

Quang Anh NGUYEN

Pour l'obtention du titre de DOCTEUR de L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

**Contribution à l'étude de la diffusion et du
transfert de spin à une interface
ferromagnétique-normal mesurés sur des
nanofils électrodéposés**

Soutenue le 20 Février 2009 devant le jury composé de :

Prof. Henri-Jean DROUHIN, (président), Ecole Polytechnique, France

Prof. Stéphane MANGIN, (rapporteur), Université de Nancy, France

M. Michel VIRET, (rapporteur), CEA SPEC, France

M. Santiago SERRANO-GUISAN, (examineur), PTB, Allemagne

M. Vincent CROS, (examineur), CNRS-Thalès, France

Prof. Jean-Eric WEGROWE, (directeur), Ecole Polytechnique, France

Thèse réalisée au Laboratoire des Solides Irradiés,
École Polytechnique, Palaiseau, France

Sommaire

Ce travail s'inscrit dans le cadre des études du transfert de spin mesuré sur un domaine ferromagnétique unique. Le monodomaine ferromagnétique est un nanofil unique de Ni ou de Co électrodéposé dans une matrice nanoporeuse.

Cette étude cherche à mettre en évidence les propriétés de relaxation des spins des électrons de conduction à l'interface entre le domaine ferromagnétique et le contact normal, en termes d'interaction entre les spins des électrons de conduction et le paramètre d'ordre ferromagnétique. Il s'agit en dernière analyse de mettre en évidence un effet de transfert de spin de type diffusif qui serait une conséquence de cette relaxation.

Dans une première approche, une accumulation de spin anisotrope, mettant en jeu l'interaction $s - d$ (ou interaction spin-orbite) est étudiée par le biais du pouvoir thermoélectrique TEP. Un effet TEP dépendant du spin est en effet mis en évidence, qui est restreint à l'interface et qui est anisotrope. Cette contribution est interprétée comme étant l'effet de l'accumulation de spin produit par une relaxation $s - d$.

Dans un deuxième temps, l'effet de transfert de spin est étudié par le biais de la susceptibilité thermique de la magnétorésistance d'anisotropie dR/dT . On montre que la susceptibilité est due à la susceptibilité de l'aimantation dM/dT . Les fluctuations de l'aimantation générées par l'injection de courant fort sont mesurées en termes de variation d'entropie. Une variation de 60% est mesurée pour un courant de l'ordre de $10^7 A/cm^2$. Ces résultats confortent une approche diffusive du transfert de spin.

Summary

This work is part of a study of the transfer of spin measured on a single domain ferromagnetic. The ferromagnetic monodomain is a single nanowire of Ni or Co electrodeposited in a nanoporous matrix.

The study aims to give prominence to the properties of spin relaxation of conduction electrons at the interface between the ferromagnetic domain and the normal contact, in terms of the interaction between the spins of conduction electrons and the ferromagnetic order parameter. This means, with the last study, to underline that the diffusive spin-transfer effect would be a consequence of this relaxation.

In a first approach, an anisotropic spin accumulation, involving the interaction $s - d$ (or spin-orbit interaction), is studied through the thermoelectric power (TEP). The spin-dependent TEP effect is proved, which is restricted to the interface and is anisotropic. This contribution is interpreted as the effect of the spin accumulation produced by a $s - d$ relaxation. résultats confortent une approche diffusive du transfert de spin.

In a second study, the spin transfer effect is studied through the thermal susceptibility of anisotropy magnetoresistance dR/dT . It shows that the susceptibility is due to the susceptibility of the magnetization dM/dT . Fluctuations in the magnetization generated by the injection of strong current are measured in terms of entropy variation. A variation of 60% is measured with a current intensity of about $10^7 A/cm^2$. These results support the diffusive spin transfer approach.

Remerciements

Bien que ne faisant apparaître qu'un seul nom en première page, un travail de thèse n'est pas un effort individuel. Je tiens à exprimer ma gratitude à une multitude de personnes qui m'ont accueilli, encouragé, conseillé, aidé, envoyé en conférence, et tout simplement, fait confiance.

Mes remerciements vont en tout premier lieu à Jean-Eric WEGROWE, qui a accepté d'être mon directeur de thèse et m'a soutenu et guidé au long de ces années. Je lui suis reconnaissant pour son écoute et sa compréhension, qui allaient bien au-delà du cadre académique.

Je remercie M. Guillaume PETITE et Mme. Martine SOYER de m'avoir accueilli au sein du Laboratoire des Solides Irradiés de l'Ecole Polytechnique, ceux qui m'ont permis d'achever ma thèse dans des conditions idéales.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance au jury de cette thèse : les rapporteurs, Prof. Stéphane MANGIN et M. Michel VIRET, qui ont accepté de rapporter ce manuscrit ; les examinateurs, M. Vincent CROS et M. Santiago SERRANO-GUISAN ; Prof. Henri-Jean DROUHIN, enfin, qui m'a fait l'honneur de présider ce jury.

Je remercie vivement M. Travis WADE qui m'a beaucoup aidé pour la fabrication des échantillons et M. Marc HAYOUN qui m'a aidé pour les calculs numériques.

J'adresse une pensée à tous les doctorants du laboratoire, et particulièrement à Jean-François DAYEN, Panayotis SPATHIS, Mihaela-Cristina CIORNEI, Feng YANG, Thi-Lam-Hoai NGUYEN.

Je remercie l'équipe administrative et technique du laboratoire, Marie-Madeleine LEMARTINEL, Christine HOUY, Isabelle TAQUIN, Bernard ALLALI Bernard JOUÉO pour leur compétence, leur disponibilité et leur gentillesse.

Pour la lisibilité et la correction de ce manuscrit, je dois un grand merci pour les lectures et relectures de Jean-Eric WEGROWE, Travis WADE et Mme. Nhu-Mai NGUYEN-DAC.

Pour finir, mes pensées vont à ma famille, mes parents, mon frère, ma copine et à mes amis qui m'ont énormément soutenu durant toute ma thèse.

Table des matières

1	Introduction	3
1.1	Objectifs de ce travail	4
1.2	Etat de l'Art	7
2	Préparation des échantillons	15
2.1	Principes d'électrodéposition	16
2.2	Membrane polycarbonate nanoporeuse	19
2.3	Préparation de la membrane et du support	19
2.4	Electrodéposition et in-situ contact	23
3	Bases théoriques	27
3.1	Introduction au ferromagnétisme	27
3.1.1	Ferromagnétisme à l'échelle macroscopique	27
3.1.2	Ferromagnétisme à l'échelle microscopique	28
3.1.3	Influence d'anisotropie	31
3.2	Magnétorésistance anisotropie	35
3.2.1	Origine physique de la magnétorésistance dans des particules magnétiques homogènes	35
3.2.2	AMR dans les nanofils	37
3.3	Transport électronique et thermique dans les métaux	39
3.3.1	Conductivité électrique et loi d'Ohm	39
3.3.2	Conductivité thermique dans le métaux	40
3.3.3	Rapport des conductivités thermique et électrique	40
3.3.4	Equations d'Onsager	41
3.3.5	Effet Seebeck	42
3.4	Thermodynamique hors-équilibre	43
3.4.1	Résistance hors-équilibre	43
3.4.2	Le cas de la GMR et de l'AMR d'interface	47
3.4.3	Magnétorésistance géante	47
3.4.4	Magnétorésistance d'interface	48

4	Protocols de mesure	51
4.1	Dispositif expérimental	51
4.2	Protocole de mesure de la magnéto-résistance	55
4.2.1	Evaluation du contact électrique du nanofil	56
4.2.2	Mesure de l'AMR en fonction de l'angle θ	58
4.2.3	Mesure de l'AMR en fonction du champ H	61
4.3	Protocole de mesure du TEP	63
4.4	Protocole de mesure de la susceptibilité χ_T	69
4.5	Protocole d'analyse	70
5	Propriétés thermoélectriques dépendant du spin	75
5.1	Introduction	75
5.2	MTEP hors-équilibre	76
5.2.1	MTEP correspondant à la GMR et à la NeAMR	80
5.2.2	Mesure du MTEP	80
5.3	Résultats expérimentaux	82
5.3.1	Caractérisation magnétique à travers l'AMR	84
5.3.2	MTEP est anisotropique	84
5.3.3	MTEP n'est pas un effet du massif	87
5.3.4	MTEP est lié aux configurations magnétiques du contact	88
5.4	Conclusion	89
6	Susceptibilité thermique de la magnéto-résistance	91
6.1	Introduction	91
6.2	Mesure de la susceptibilité thermique	94
6.3	Entropie magnétique et transfert de spin	100
6.4	Conclusion	106
7	Conclusion	109
A	Etats d'équilibre de l'aimantation	113
A.1	En fonction du champ magnétique H	113
A.2	En fonction de l'angle θ	117
B	Susceptibilités de l'aimantation	121
	Bibliographie	124

Chapitre 1

Introduction

L'électronique de spin est une branche récente de la physique du solide qui concerne à la fois les propriétés de transport de charge et les propriétés liées à la présence de spins sur les porteurs de charges. Grâce aux propriétés de transport dépendant du spin, il est possible, dans les matériaux adéquats, de contrôler les résistances électriques avec des configurations magnétiques particulières (par exemple dans le cas de la *magnétorésistance géante* : la GMR). Inversement, il est aussi possible de contrôler une configuration magnétique particulière avec les courants de spins d'intensité suffisante. On parlera alors de *transfert de spin*. En conséquence, ce domaine d'activité est aussi fortement concerné par les propriétés ferromagnétiques dans les métaux. Le travail présenté ici concerne uniquement des métaux de transition $3d$, et en particulier ceux d'entre eux qui sont ferromagnétiques, comme le nickel, le fer, le cobalt et leurs alliages.

Ce domaine de recherche demande donc la maîtrise de deux branches importantes de la physique du solide qui sont les phénomènes de *transport de charges* et le *ferromagnétisme*. Mais il est un troisième grand domaine d'activité de la physique et de la chimie indispensable à l'électronique de spin, et qui concerne de la taille des échantillons. C'est le champ d'investigation des nanotechnologies et *nanostructures*. Les longueurs caractéristiques de diffusion de spin, ou la taille caractéristique d'un monodomaine magnétique impose la contrainte des tailles nanométriques. Il s'agit en fait d'un obstacle majeur pour l'expérimentateur qui cherche à comprendre tel ou tel problème, de répondre à telle question ou interrogation fondamentale, ou juste d'avancer dans l'acquisition des connaissances à propos des propriétés du transport dépendant du spin. Les mesures les plus simples sont difficiles car il faut pouvoir fabriquer les échantillons, et les mesurer en réalisant un contact qui ne perturbe pas trop le système étudié, sachant qu'à cette échelle, les contacts électriques sont facilement plus gros que la taille des objets étudiés.

Cette contrainte de fabrication et de mesure justifie que l'ensemble du travail présenté dans la thèse a été réalisé sur des nanofils obtenus par une même technique d'*électrodéposition dans une matrice nanoporeuse et contactés individuellement in-situ* (description dans le chapitre 2). De plus, ce travail focalise essentiellement sur les effets d'accumulation de spin observée aux interfaces d'*un domaine magnétique unique*, (et non pas nécessairement de multicouches du type vanne-de-spin). La couche magnétique est ici un nanofil de quelques microns de long et quelques dizaines de nanomètres de large. Il s'agit en fait de poursuivre les expériences d'injection de spin initiées par les travaux pionniers de Silsbee et Johnson du début des années 1980, réalisées avant la découverte de la magnétorésistance géante sur des couches minces. Ce travail repose sur l'utilisation de ces nanostructures magnétiques types, qui ont fait l'objet d'un grand nombre de travaux préalables, et sur lesquels le groupe entretient un savoir-faire depuis plus de dix ans. L'essentiel du travail de thèse a consisté à fabriquer et à caractériser des centaines d'échantillons, avant de pouvoir réaliser des mesures complètes sur le peu d'entre eux qui se révèlent suffisamment propres pour exhiber un comportement ferromagnétique uniforme, et avec un contact électrique suffisamment robuste et faiblement résistif pour supporter des flux de chaleurs importants et des densités de courant extrêmes. Ce sont ces quelques mesures complètes, exposées dans ce mémoire, qui donneront éventuellement lieu à une meilleure compréhension des phénomènes en jeu.

1.1 Objectifs de ce travail

Nous nous sommes fixé comme objectif de répondre à deux questions fondamentales (listée ci-dessous) relatives à la compréhension du processus d'accumulation de spin dans des nanostructures métalliques, et en particulier la relation qu'entretient l'*accumulation de spin* avec les mécanismes de retournement de l'aimantation par *transfert de spin*.

En effet, quelque soit la façon de le concevoir, le transfert de spin est avant tout la conséquence d'une interaction entre les spins des électrons de conduction et le paramètre d'ordre ferromagnétique. A partir de là, il y a plusieurs façons de décrire le régime stationnaire qui s'installe à une interface normal/ferromagnétique (ces différentes approches peuvent se révéler équivalentes en dernière analyse).

Pour interpréter le transfert de spin, on peut mettre en avant la non-conservation des moments ("torque") de spin des électrons de conduction de part et d'autre de l'interface. Dans ce cas, on suppose que la composante non conservée dans le bilan des moments est complètement transmise au

paramètre d'ordre ferromagnétique (c'est le principe "action-réaction" de la mécanique), sans dissipation par ailleurs (une supposition qui repose sur une interaction spin-orbite). Le terme de "torque" absorbé par l'interface se retrouve alors entièrement dans l'équation Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) de la dynamique de l'aimantation macroscopique. Les modèles focalisent alors sur les conditions aux limites en termes de coefficients de transmission et de réflexion dépendant du spin des électrons de conduction. Ce modèle est déterministe dans le sens où l'on ne considère pas les processus de diffusion intervenant par le biais des différents canaux dissipatifs, et il convient bien à une approche balistique du transport électronique. Toute la complexité des transferts d'énergie, de charges et de moments est réduite aux conditions aux limites à l'interface. On peut alors parler de "spin-transfer torque" ou STT.

Dans une autre interprétation (approche "diffusive spin-transfer"), celle adoptée ici, on va examiner l'ensemble des canaux dissipatifs par lesquels l'énergie, la charge et les moments de spin vont relaxer de part et d'autre de l'interface. Cela revient à décrire les processus de diffusion des spins des électrons de conduction (populations de spins mis hors-équilibre par l'interface) qui vont intervenir dans les bilans de conservations de l'ensemble des grandeurs pertinentes. Dans cette approche (dont la méthode est celle qui est utilisée pour la description de la magnétorésistance géante), l'interaction entre les électrons de conduction et l'aimantation ferromagnétique (relaxation $s - d$) n'est pas détaillée non plus. Mais cette relaxation, à l'origine du transfert de spin, doit aussi avoir des conséquences sur le transport électronique. Le fait de mettre en évidence expérimentalement cette contribution est donc déterminant.

Première objectif (Chapitre 5) : Cet objectif est d'étudier des canaux de relaxations responsables de l'accumulation de spin à une interface entre deux métaux de transition $3d$. Dans le cadre de l'étude du transfert de spin, on repart de l'idée initiale proposée par Sir Nevill Mott en 1936 qui introduit les deux types d'électrons de conduction : les électrons de type " s " (délocalisés, parabolique, et paramagnétiques) et les électrons de type " d " (électrons de cœur localisés, masse effective importante, ferromagnétique), et les mécanismes de relaxation qui leur sont associées. On se pose la question simple de savoir comment ces deux espèces électroniques interviennent dans l'accumulation de spin, en particulier en généralisant le modèle à deux canaux de spin (des électrons de la bande s) de la GMR. Plus précisément, on cherche à mettre en évidence une contribution de la relaxation " $s - d$ " (la relaxation liée à l'interaction spin-orbite) dans l'accumulation de spin, en plus de la contribution "*spin-flip*" (ou "*spin-mixing*") habituelle.

Pour accéder à la contribution de l'interface à la résistance dépendante du spin, les mesures usuelles de la magnétorésistance ne sont pas suffisantes

en raison de la contribution trop importante de la *magnétorésistance d'anisotropie* (AMR) par rapport à une éventuelle contribution hors-équilibre de l'interface (l'AMR à pour origine l'interaction spin-orbite, qui est anisotrope : voir Chapitre 3). Pour cette raison, nous avons exploré le transport dépendant du spin mesuré à travers le pouvoir thermoélectrique, ou TEP. C'est la réponse en tension (i.e. une différence de potentiel électrique) à un gradient de température en courant électrique nul (le gradient de température crée un flux de chaleur porté par les électrons : c'est l'effet Seebeck). Nous avons développé pour cela un dispositif de mesure original. *Les résultats présentés dans ce mémoire sont tous issus de ce dispositif.* Nous montrerons qu'une contribution de l'interface est effectivement observée dans le signal TEP, et que ce signal semble bien être relié à l'AMR et donc à la relaxation $s - d$.

Deuxième objectif (Chapitre 6). Nous cherchons à mesurer l'effet du transfert de spin sur les branches réversibles du cycle d'hystérésis de l'aimantation (positions d'équilibre quasi-statique) en fonction du champ magnétique. Pour cette question aussi il est difficile d'accéder directement aux modifications du cycle sous courant important en raison de l'échauffement Joule et des flux de chaleurs importants. Une stratégie de "contournement" peut aussi être adoptée dans ce cas en mesurant la susceptibilité thermique de l'aimantation. Le même dispositif de mesure que celui mis au point pour le TEP est utilisé, dans lequel l'échauffement total (ou moyen) du nanofil - et non pas le gradient de la température - est exploité.

Nous montrons dans un premier temps (mesure en courant faible) que le signal mesuré via l'AMR en réponse de la variation de température est effectivement celui de la susceptibilité thermique de l'aimantation. Cette démonstration repose sur la superposition des résultats de mesure et ceux du calcul de la susceptibilité thermique de l'aimantation effectuée dans le cas d'un monodomaine ferromagnétique avec une anisotropie uni-axiale (ce qui est le cas du nanofil de nickel, comme le montre le profil d'AMR). En courant fort, c'est-à-dire avec le transfert de spin, la variation du profil de susceptibilité est très nettement observée. Cette variation est traduite en termes de variation d'entropie en fonction de la température ; qui est de l'ordre de 60 % pour une densité de courant de quelque $10^7 A/cm^2$. Ces résultats donnent une première quantification du transfert de spin décrit en termes de variation d'entropie. Ceci est un argument important en faveur d'une interprétation non-déterministe du transfert de spin, qui s'oppose aux interprétations déterministes en termes de champs effectifs. Cependant, dans ce cas aussi, les états d'aimantation hors-équilibre et les modes d'excitation des ondes de spin restent à analyser pour pouvoir conclure.

1.2 Etat de l'Art

Transport dépendant du spin et magnétorésistance d'anisotropie

Le concept de transport dépendant du spin a été introduit dès 1935 - 1936 par Nevill Mott pour rendre compte de la résistance des métaux de transition $3d$ sous la température de Curie [1]. Mott introduit l'idée du modèle à deux fluides, ou modèle à deux canaux de conduction : l'un pour les électrons de conduction de la bande s et l'autre pour les électrons de conduction de la bande d minoritaire (la bande d des spin majoritaire étant complète). L'idée est étendue dans les années 1950 pour tenter de calculer les effets de magnétorésistance d'anisotropie (AMR) sur la base de la relaxation $s - d$ générée par l'interaction spin-orbite [2]. Ce travail est poursuivi jusque récemment, et l'article de revue de McGuire et Potter [14], qui fait le point sur l'AMR en 1975 est de plus en plus cité. Notons que les conséquences de la relation (ou transition) $s - d$ est aussi évoqué pour tenter d'expliquer les valeurs (et le signe) de la thermoélectricité dans les mêmes métaux [3].

Indépendamment des propriétés de transport, le ferromagnétisme des métaux de transition $3d$ fait l'objet de discussions et travaux similaires : outre les contributions localisées (électrons d), une contribution au ferromagnétisme est aussi due aux électrons itinérants s et d (d'après Stearn 5% des électrons d sont itinérants et le reste est localisé) [4, 5]. Trente ans plus tard, le problème lié au caractère itinérant ou localisé du magnétisme des métaux de transition ne semble pas avoir été mieux compris.

Pour revenir au transport dépendant du spin dans les métaux de transition $3d$, des progrès importants sont réalisés dans les années 70 pour la compréhension des mécanismes de diffusion (scattering) sur des impuretés ferromagnétiques dont la direction (minoritaires vs. majoritaire) est bien contrôlée. Cela conduit A. Fert et ses collaborateurs à envisager un mécanisme qui sera décrit plus tard comme celui responsable de la magnétorésistance géante [6].

Accumulation de spin et magnétorésistance géante

De façon assez notable l'étape déterminante pour la découverte de la magnétorésistance a été l'étude des effets d'injection de spin ou, de façon équivalente, de l'accumulation de spin qui se produit à l'interface entre un métal ferromagnétique $3d$ et un métal non ferromagnétique. Le paramètre clef est maintenant la présence de l'interface. Le modèle à deux canaux s'applique maintenant au spin "up" et "down" des électrons de conduction sans évoquer

la structure de bande. La découverte de l'injection de spin est réalisée à la suite des expériences de résonance ferromagnétique par R. H. Silsbee menées à Orsay, et appliquée au transport dépendant du spin à Cornell University par M. Johnson et Silsbee [7]. La relaxation de spin est décrite dans l'article cité par le temps de relaxation T_2 de l'équation de Bloch de la résonance paramagnétique, et ce qui deviendra l'accumulation de spin (voir ci-dessous) est décrit par un "potentiel magnétique" H^* (modèle thermodynamique rapporté dans la référence [8]). De façon indépendante et pratiquement équivalente, l'équipe de P. Wyder à Grenoble propose, deux ans plus tard, un modèle théorique de l'accumulation de spin sur la base de la redistribution des populations de spin "up" et "down" à une interface entre un métal ferromagnétique $3d$ et un métal normal [9]. Les auteurs introduisent pour la première fois dans ce contexte la différence de potentiel chimique $\Delta\mu$ entre les deux canaux de conduction, une grandeur promise à un bel avenir. C'est cette approche (à travers l'équation de diffusion de $\Delta\mu$) qui sera confirmée et généralisée à un super-réseau, dans le cadre de l'équation de Boltzmann sous le terme de modèle de Valet-Fert, en 1993 [10] et par les travaux de P. Levy et S. Zhang [11]. Le travail du groupe de P. Wyder était inspiré des travaux antérieurs sur l'injection de courant dans une interface normal/supraconducteur, pour lesquels une différence de potentiel chimique est aussi introduit pour les quasi-particules. On notera l'analogie significative avec la supraconductivité par le fait que le comportement hors-équilibre à l'interface des porteurs de charges microscopiques est déterminé par les variations du potentiel chimique d'un paramètre d'ordre macroscopique.

Finalement, les résultats expérimentaux déterminants ont été réalisés par l'équipe de A. Fert sur les multicouches du type Fe/Cr. Il s'agit de l'observation de la magnétorésistance géante, publiée en 1988 [12]. Il est suivi de façon indépendante par le travail de l'équipe allemande de P. Gruenberg publié en 1989 [13]. Quelle est la différence fondamentale entre les travaux sur l'injection de spin, ou accumulation de spin, et la GMR ? En fait, le point clef ici est que l'accumulation de spin à une interface ne peut pas être directement mesuré à partir de la magnétorésistance, car il n'y a pas d'état de référence sans accumulation de spin. L'invention de la GMR repose sur la possibilité de commuter avec le champ magnétique extérieur entre un état sans (ou avec faible) accumulation de spin (l'état pour lequel les couches magnétique sont alignés dans la même direction) et les états magnétiques générant une forte accumulation de spin (états des couches anti-alignées typiquement).

Pouvoir thermoélectrique dépendant du spin

Bien que n'étant pas nécessaire pour décrire efficacement la GMR, le problème de la structure de bande et de la relaxation $s - d$ restait assez mal compris. En effet, on sait bien que l'interaction spin-orbite (donc $s - d$) est responsable de la polarisation en spin des courants, et joue donc un rôle déterminant (via le phénoménologique β). Ce rôle est d'ailleurs manifeste dans l'effet de transfert de spin (voir ci-dessous). Comment accepter que ce paramètre n'intervienne pas explicitement dans le modèle à deux canaux de l'accumulation de spin et de la GMR ? Pour répondre à cette interrogation, un certain nombre d'études ont été entreprises sur le pouvoir thermoélectrique (TEP) dépendant du spin (MTEP), c'est à dire sur des mesures de coefficient Seebeck (ou Peltier). En effet, l'effet thermoélectrique permet d'accéder indépendamment aux processus de relaxation qui sont à l'oeuvre dans le transport de charges électrique. Dans les bons métaux, la relation entre la conductivité électrique, la conductivité thermique, et les coefficients thermoélectriques est la relation de Wiedemann-Franz, qui s'exprime très simplement. De même, la relation entre le coefficient Seebeck et la conductivité est donnée par la formule de Mott. On retiendra les publications suivantes [15, 16, 17, 18, 19], qui étudient la validité de la formule de Mott du TEP.

Les résultats de ces comptes-rendus sont assez contradictoires. Si le groupe d'Albert Fert [16] interprète leurs résultats par la relaxation spin-flip (celle qui est présente dans la GMR), le groupe de Urbana/IBM [17, 18] interprète les résultats par les différences de densité d'états au niveau de Fermi, ce qui impliquent donc les bandes s et d .

Finalement, ces travaux ne proposent pas de conclusions précises sur les mécanismes en jeu, en particulier sur le rôle de la relaxation $s - d$. Notons cependant que les deux points de vue se seraient réconciliés avec cette hypothèse. Le chapitre 5 et la référence [20] reprend le problème dans cette optique.

Le transfert de spin par injection de courant

Dans ce contexte, la découverte de l'effet de transfert de spin dans les années 1998 - 2001 [21, 22, 23, 24] devrait ouvrir de nouveaux horizons pour la compréhension des mécanismes physiques qui relient les spins des électrons de conduction à l'aimantation. En effet, le transfert de spin est le terme générique par lequel on décrit les observations de retournement d'aimantation d'une couche ferromagnétique du fait de l'injection d'un courant polarisé en spin. La grandeur qui fait l'objet des mesures est maintenant l'état de la variable ferromagnétique. Dans le cas de l'électronique de spin décrite

précédemment, les grandeurs étudiées étaient les coefficients de transport (conductivité dépendante du spin, coefficients de Seebeck, etc.), et l'aimantation jouait un rôle secondaire (comme polariseur en spin des courants). Dans le cas du transfert de spin, la grandeur étudiée est l'aimantation et sa dynamique, et le transport joue un rôle secondaire (celui de l'excitation, au même titre qu'un champ magnétique ou une interaction dipolaire). Le transport dépendant du spin est cependant utilisé la plupart du temps comme sonde, pour mesurer les états de l'aimantation de la nanostructure magnétique.

Il a été démontré, à la suite de plusieurs études récentes menées sur les vannes de spins [25, 26] et sur les jonctions tunnels, que ce mécanisme est lié à l'accumulation de spin. Il se passe donc *quelque chose* entre la redistribution des spins des électrons de conduction à l'interface (décrit par un potentiel chimique $\Delta\mu$ non homogène) et le paramètre d'ordre ferromagnétique (lié aux électrons localisés $3d$). Mais comment d'écrire ce mécanisme qui couple un paramètre microscopique (le spin des électrons de conduction) à une variable collective macroscopique (le paramètre d'ordre ferromagnétique) ?

C'est en effet dans ce contexte que Luc Berger prédit l'effet de transfert de spin dans le premier travail théorique à ce propos [27]. Berger fait l'hypothèse d'une relaxation des spins de type $s - d$ à l'interface. Il calcule le temps de relaxation $s - d$ par le biais de l'interaction spin-orbite, et en déduit que l'énergie correspondante $\Delta\mu$ est transférée des spins des électrons de conduction à l'aimantation, ce qui conduit à l'excitation des ondes de spin. Berger décrit donc un mécanisme de transfert qui repose sur la relaxation $s - d$, et rejoint en cela les interrogations sur un mécanisme de relaxation hors-équilibre. Et c'est apparemment dans le même schéma que la première expérience de transfert de spin (sur couche Co/Cu/Co) par l'équipe de P. Wyder à Grenoble est interprétée [21]. C'est bien la même équipe qui avait introduit l'idée de l'accumulation de spin $\Delta\mu$ en 1987. Le transfert de spin observé est donc naturellement décrit par un transfert d'énergie à l'échelle microscopique tel que $\Delta\mu = h\nu$, pour les excitations des ondes de spin de fréquence ν . Dans ce premier travail, le transfert de spin est explicitement décrit par l'accumulation de spin seul, qui est le même terme que celui utilisé dans le cadre de la GMR.

Par ailleurs, la même année et de façon indépendante, John Slonczewski propose un modèle de transfert de spin [28], sur la base de l'absorption des moments magnétiques (spin-transfer torque : STT) des électrons de conduction (décrit par une onde de Bloch avec spin) à l'interface. Slonczewski déduit une équation de Landau-Lifshitz-Gilbert pour les moments de spin avec un terme supplémentaire STT déterministe. Le transfert entre les moments de spin absorbés par l'interface (via les coefficients de réflexion et de transmis-

sion des ondes de Bloch dépendant du spin) et le réseau, est la loi "d'action-réaction" (ou troisième loi de Newton). C'est à ce titre, il s'agit d'un moment au sens mécanique du terme (un torque). Le mécanisme en jeu n'est pas évoqué, mais il faut nécessairement supposer une interaction (qui vérifie la loi de conservation en question) entre les spins absorbés par l'interface et l'aimantation du réseau. Cette loi d'action-réaction ressemble, en dernière analyse, à un couplage spin-orbite implicite.

La très grande majorité des études expérimentales menées sur le transfert de spin vont se référer au modèle de Slonczewski, qui est largement le plus simple d'utilisation. En première approche, il n'y a pas d'hypothèse relative à la diffusion de spin (accumulation de spin, interaction spin-orbite, relaxation $s - d$, etc.).

En contraste, des approches alternatives sont proposées, qui s'inscrivent dans la direction initiée par L. Berger de *ST diffusif* (qui s'oppose donc à priori au *ST torque*). C'est en particulier le cas dans l'article de C. Heide [29, 30], qui considère explicitement les contributions respectivement des spins des électrons de bande s (paramagnétique) et d (ferromagnétique) avec des équations de Landau-Lifshitz-Gilbert couplées pour chaque sous-système. Dans cette optique on a aujourd'hui les travaux considérables de Rebei et al.[59] et Duine et al.[60, 61]

C'est aussi le cas, de façon très similaire mais reposant sur un autre formalisme, avec le modèle de "diffusive spin-transfer" développé par le groupe du LSI [31, 32].

Un certain nombre de travaux récents visent à concilier les deux approches : la relaxation de spin (i.e. l'accumulation de spin) avec le STT, par le biais de la diffusion de spin transverse [33, 34, 35, 36, 37]. Le principe est de reprendre l'accumulation de spin (type modèle Valet-Fert) de façon vectorielle (avec les termes transverse et longitudinal de $\Delta\mu$), et de calculer le courant polarisé en spin avec comme conditions aux limites les conditions imposées par les coefficients de transmission/réflexion calculer dans le cadre du STT.

La différence entre ces approches "mixte" et les approches 100% diffusive est que ces dernières traitent aussi de la relaxation de spin longitudinal (avec par exemple le $\Delta\mu$ scalaire de la GMR).

Le rôle des nanofils électrodéposés

La série d'études réalisées à Lausanne [22, 38, 39, 40, 41] et à l'Ecole Polytechnique [42] sur le transfert de spin observé dans un *monodomaine ferromagnétique unique* (et non pas sur des multicouches) posent le problème de façon spécifique. La mise en évidence de l'existence du transfert de spin

dans une couche unique a aussi été confirmé sur d'autre système [43, 44, 45].

Cette configuration ne rentre pas dans la description théorique de Slonczewski et il faut considérer ces résultats comme étant en faveur des interprétations alternatives du transfert de spin, mentionnées ci-dessus.

Il faut préciser que ces recherches ont été complétées par les études plus orthodoxes sur des multicouches Co/Cu/Co avec les mêmes résultats (y compris quantitativement) que les autres groupes [46, 47, 48]. Ces travaux sur le transfert de spin dans les nanofils électrodéposés sont aujourd'hui développés avec de nouvelles techniques de mesures par le groupe CNRS/Thales et Louvain [49].

Un certain nombre de résultats importants ont été obtenus avec cette technique. Dans le cadre de notre étude nous nous sommes focalisé sur deux points particulièrement surprenant concernant les résultats de transfert de spin sur un monodomaine magnétique. On montre (voir la référence [42]) que le contact ferromagnétique joue un rôle important dans le transfert de spin. Lorsque l'interface ferromagnétique/normal (F/N) est présente à l'intérieur du nanofil (le contact est alors en Cu ou en Au), l'effet est beaucoup plus faible (cet effet ne semble pas directement lié aux inhomogénéités de l'aimantation). D'autre part, lorsqu'on inverse le sens du courant, l'effet est inchangé (contrairement au cas des multicouches vanne-de-spin) pour les angles larges du champ appliqué, mais apparemment pas pour les angles faibles (voir la figure 11 de la référence [41]).

Le contact joue un rôle important, mais qui reste très mystérieux. Une étude antérieure sur la magnétorésistance induite par des parois de domaine magnétique contraintes (domain wall scattering : DWS) dans les nanofils de Co montre que cet effet est très faible (relativement à la résistance d'un nanofil de plusieurs microns de long), et très difficile à obtenir. Il faut en effet des parois très contraintes, comme celles qui sont réalisées à une interface GdCo/Co sous un champs magnétique de l'ordre de $5T$ et à quelques Kelvin, pour voir un effet significatif sur la magnétorésistance [50]. Le rôle du contact magnétique dans le transfert de spin n'est donc pas, à priori, simplement un effet direct de l'accumulation de spin produit par la paroi (du type décrit dans la référence [51]).

D'autre part, les propriétés de pouvoir thermoélectrique ont aussi été étudiées sur les nanofils (monodomaine de Ni ou Co) et en multicouches par l'équipe de Lausanne [52, 53, 54, 55, 56]. L'interprétation focalise sur la relaxation spin-flip. L'hypothèse d'une relaxation $s-d$ n'est pas mentionnée.

La première étude réalisée dans la thèse vient en prolongement direct de ces travaux.

La deuxième partie de la thèse s'inscrit en revanche dans une tout autre tradition, mais exploite la même instrumentation mise aux point pour les

mesures de la puissance thermoélectrique, avec en addition l'injection de courant de forte intensité.

La susceptibilité magnétique

Lorsqu'on procède à des expériences de pouvoir thermoélectrique, on applique un gradient de température sur l'échantillon, et on mesure la tension générée aux bornes. On doit donc coupler chaque extrémité de l'échantillon respectivement à un réservoir de chaleur chaud et un réservoir froid. Cependant, dans le cas d'un échantillon nanoscopique, ce problème du couplage est redoutable. En effet, le couplage thermique pose un problème au moins comparable au couplage électrique (avec des réservoirs de chaleur plutôt que de charges, de part et d'autre). Et nous avons vu que le contact était bien le point clef de toutes les expériences de transport à cette échelle (rappelons que le contact est souvent plus gros que l'objet mesuré). Le contrôle des isothermes est encore plus difficile que le contrôle des équipotentiels à petite échelle car les gradients de températures ne sont pas homogènes au niveau des interfaces ou des défauts. De plus, lorsqu'un courant est injecté, la présence de potentiel électrique induit des flux de chaleurs très importants (c'est l'effet Peltier) et difficilement contrôlables sous fort courant [57]. C'est la raison pour laquelle les expériences de pouvoir thermoélectrique, avec injection de courant sont délicates à interpréter.

Nous montrons ici que dans notre configuration expérimentale, un échauffement significatif du nanofil en entier est observé, et que cet échauffement induit une variation des états ferromagnétiques en fonction de la température qui se répercutent sur les mesures de magnéto-résistance. Bref, nous montrons que ces mesures sont des mesures de susceptibilité thermique magnétique.

Chapitre 2

Préparation des échantillons

Il existe à ce jour deux approches différentes pour fabriquer des nanostructures : l'approche "top-down" et "bottom-up". L'approche "top-down" commence par une structuration en couche du matériau massif, puis les nanostructures s'obtiennent par gravure et *lift-off*. Au contraire, celle de "bottom-up" consiste à construire des nano-objets en assemblant des atomes, ions ou molécules de bas en haut.

L'approche "top-down" est déjà très utilisée dans l'industrie dont la précision atteinte $50nm$. Ces méthodes sont basées sur des techniques lithographies très sophistiquées comme par exemple : la lithographie optique avec des rayons ultraviolets extrêmes ou des rayons X dur, la lithographie à faisceau d'électrons ou d'ions... dans un environnement extrêmement contrôlé, celui d'une salle blanche. Donc, celles-ci demandent des investissements colossaux et les coûts de production sont assez importants.

Par contre, l'approche "bottom-up" est basée sur l'effet auto-organisation, la formation par association spontanée des atomes, des ions ou des molécules désordonnées pour construire des nanostructures. Les méthodes basées sur cette approche sont nombreuses et en plein développement. L'avantage de ces méthodes est la rapidité et la précision. Par contre, il est difficile de construire un système complexe avec l'approche "bottom-up". Il faut donc une approche "mixte" pour résoudre le problème, par exemple, graver des motifs par lithographie puis faire croître des nanostructures avec les méthodes "bottom-up".

Les nanofils de nickel, ou bien les multicouches Co/Cu/Co de $10nm$ d'épaisseur de chaque couche, que nous étudions dans ce travail sont fabriqués par la méthode "template synthesis" [62], une méthode basée sur l'approche "bottom-up". Il s'agit d'une technique qui repose sur l'électrodéposition dans des membranes nanoporeuses commerciales [63] fabriquées par la méthode "ion track-etched" [72]. En comparant avec la méthode d'épitaxie

par jet d'électrons sur des substrats gravés par lithographie, qui est donc la méthode la plus utilisée actuellement, la méthode d'électrodéposition dans des membranes nanoporeuses est une façon relativement simple et bon marché pour fabriquer des nanostructures magnétiques, particulièrement pour des nanofils cylindriques dont le diamètre est inférieur à $100nm$.

Cette méthode a quelques particularités intéressantes et utiles. Premièrement, on peut préparer des nanofils cylindriques de matériaux différents, comme métaux, oxydes, ou semi-conducteurs [73]. Deuxièmement, le diamètre des nanofils est très petit, donc difficile à préparer par la technique lithographie. Troisièmement, on peut retirer les nanofils de la membrane en la dissolvant afin de faire des études avec les techniques microscopies.

2.1 Principes d'électrodéposition

L'électrochimie [64] [65] est l'étude des réactions chimiques qui se produisent à l'interface entre un électrolyte et une électrode et qui impliquent le transfert d'électrons à ou de la surface de l'électrode. L'électrolyte est généralement une solution aqueuse qui contient des ions mobiles, donc elle peut conduire un courant électrique. L'électrode est une surface conducteur en contact avec l'électrolyte. Electrodeposition est un sujet de l'électrochimie qui étudie des réactions sous forme :



d'un électrolyte à un solide, où M est un métal. La déposition du métal est le résultat de la réduction des ions dans la solution à une électrode chargée négativement (une cathode).

Lorsqu'un métal moins électronégatif entre en contact avec la solution d'un autre plus électronégatif, il y a aussi la réaction "remplacement chimique" peut avoir lieu. Par exemple, une couche de cobalt dans une solution sulfate de cuivre sera transformée en cuivre d'après la réaction suivante :



L'électrodéposition d'un métal s'effectue par la réduction des ions dans un électrolyte à la cathode d'une cellule électrochimique. Un montage standard pour l'électrodéposition consiste d'une cellule contenue un électrolyte et trois électrodes connectées à un potentiostat.

L'électrode de travail (WE - working electrode) est la cathode où la réaction a lieu ; le potentiel de l'électrode de travail est mesuré par rapport à l'électrode de référence (RE - reference electrode). Pour maintenir l'électrode

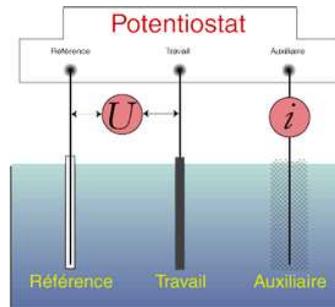


FIG. 2.1 – Schéma principe de l'électrodéposition. Un bain électrolytique contient de ions qui se déplacent sous l'influence d'un potentiel appliqué.

de travail à un potentiel constant, il faut éviter de faire passer un courant par l'électrode de référence (ce qui changerait son potentiel). Ceci nécessite une troisième électrode : l'électrode auxiliaire, parfois appelée contre-électrode (CE - counter electrode). Le rôle de l'électrode auxiliaire est crucial afin de maintenir un potentiel constant à l'électrode de travail, qui est nécessaire pour contacter un seul nanofil dans une membrane qui contient des millions de pores. Les charges mobiles (les ions) qui passent à travers l'électrolyte complètent le circuit. Le courant circule alors entre l'électrode de travail et l'électrode auxiliaire. Dans ce travail, nous avons utilisé une électrode de référence $Ag/AgCl$ remplie de KCl saturé. Le matériau choisi pour l'électrode auxiliaire est l'or, afin d'éviter toute sorte de pollution qui peut affecter la réaction à l'électrode de travail.

Dans le mode *potentiostatic*, le potentiostat applique un potentiel entre l'électrode de travail et l'électrode auxiliaire de telle façon que le potentiel entre l'électrode de travail et l'électrode de référence est maintenu à une valeur spécifique. Simultanément, le potentiostat surveille le courant qui circule entre l'électrode auxiliaire et l'électrode de travail. (Alternativement, le potentiostat peut utiliser pour appliquer un courant constant entre l'électrode de travail et l'électrode auxiliaire et surveiller le potentiel, par application du *galvanostatic* mode).

Lorsque le potentiel appliqué à l'électrode de travail est plus négatif que celui de l'électrode auxiliaire, les ions vont être réduits en métaux sur l'électrode de travail. (Dans le cas où le potentiel est appliqué dans le sens opposé, le métal déposé sera oxydé et les ions vont rentrer dans l'électrolyte).

Le processus de l'électrodéposition est influencé par quelques paramètres : la concentration des ions métal dans l'électrolyte (particulièrement important pour la déposition des alliages), la température (qui détermine la vitesse de déposition), le pH de l'électrolyte (qui détermine le ratio de dissolution et

Sel	m[g/l]	pH	Temps de dépostion[s]
$NiSO_4 \cdot 7H_2O$	120	3.6	600
H_3BO_3	30		
Sel	m[g/l]	pH	Temps de dépostion[s]
$CoSO_4 \cdot 7H_2O$	120	3.3	60
H_3BO_3	30		
Sel	m[g/l]	pH	Temps de dépostion[s]
$CoSO_4 \cdot 7H_2O$	120	3.2	300
$CuSO_4 \cdot 5H_2O$	1.6		
H_3BO_3	45		
Sel	m[g/l]	pH	Temps de dépostion[s]
$CuSO_4 \cdot 5H_2O$	30		
H_3BO_3	20		

TAB. 2.1 – Composition des bains électrolyte utilisés pour la déposition de fils de Ni, Co, multicouches Co/Cu/Co et Cu contact

peut être contrôlé en ajoutant des tampons), le potentiel de déposition (i.e. le potentiel de l'électrode de travail par rapport à l'électrode de référence), la densité de courant. Les effets de ces variables sur la croissance et les caractéristiques de déposition (taille de grain, texture, uniformité ...) sont documentés pour les matériaux massifs [66]. L'électrodéposition d'une couche mince plane est traitée dans [67] et pour des alliages magnétiques dans [68].

Les compositions des bains électrolytes (Table 2.1) sont optimisées à partir des recettes bien connues [69][71][70]. Dans la table 2.1, nous montrons aussi l'ordre de grandeur du temps de déposition et le temps de croissance des nanofils dans les pores avant qu'ils arrivent à la surface de la membrane.

L'électrodéposition dans des pores extrêmement petit (en diamètre) et profond est différent par rapport à celle sur une grande surface (capillarité, croissance verticale versus latérale).

L'efficacité du courant de déposition (le ratio entre le courant associé avec la neutralisation des ions et le courant total passé à travers le contre-électrode) augmente avec le potentiel négatif qu'on applique entre l'électrode de travail et celle de référence [70]. Les pores sont donc remplis plus vite si le potentiel appliqué est plus négatif. Cependant, les propriétés magnétiques des nanofils de Nickel (Ni) sont quasi insensible aux conditions de déposition. Par contre, le cas de ceux du Cobalt (Co) est complètement opposé, donc très sensible aux conditions de déposition.

Le potentiostat est connecté avec un ordinateur, donc le potentiel appli-

qué et le courant de déposition sont affichés à l'écran et enregistrés sur le disque. Via le potentiel appliqué envoyé au potentiostat, nous pouvons donc piloter le processus d'électrodéposition par ordinateur. Le temps de déposition jusqu'au moment où un contact s'établit est très bien défini, varie entre 5% et 10% et dépend bien évidemment de la nature des nanofils électrodéposés. On peut donc l'utiliser comme la première critère pour la qualité du nanofil électrodéposé (avoir un contact simple, stable avec une résistance petite et avoir les propriétés magnétiques attendues).

2.2 Membrane polycarbonate nanoporeuse

La membrane utilisée est une membrane polycarbonate perforée de trous cylindrique avec un diamètre à peu près identique. En fait, ces membranes sont des filtres polymère nanoporeuses. Elles sont préparées par la méthode *track-etch* [72]. Le principe de base est que le passage rapide des ions lourds à travers un matériau diélectrique laisse des traces latentes. Les zones endommagées sont chimiquement plus actives que le reste et peuvent être dissoutes par des produits chimiques convenables. Les pores créés ont la forme cylindrique avec le diamètre à peu près uniforme de quelques dizaines de nanomètres.

Il y a plusieurs types de membranes avec des différents diamètres nominaux, de 10nm jusqu'à 200nm . Le diamètre nominal des pores est estimé par le fournisseur : 50nm pour PO50, 30nm pour PO30 et 10nm pour PO10. La densité des pores est environ $6 \times 10^8 \text{ pores/cm}^2$. L'épaisseur est de $6\mu\text{m}$ pour tous types de membrane. Dans ce travail, nous avons utilisé les PO10 et PO30.

L'analyse des membranes au microscope montre que le diamètre des pores est plus grand que la valeur nominale [74]. À l'aide du microscope électronique à balayage, nous avons vu que le diamètre de pore est autour de 35nm pour PO10 et 50nm pour PO30 (Fig. 2.2). Par contre, la densité des pores est assez correcte.

2.3 Préparation de la membrane et du support

Afin d'établir des contacts électriques, on dépose deux couches d'or sur les deux côtés de la membrane (Fig. 2.3). L'épaisseur de chaque couche est différente car elle ne joue pas le même rôle. La couche au-dessous est assez épaisse, environ de 200nm , afin de boucher tous les pores. Elle sert aussi le rôle de l'électrode de travail lors de l'électrodéposition. Celle au-dessus est

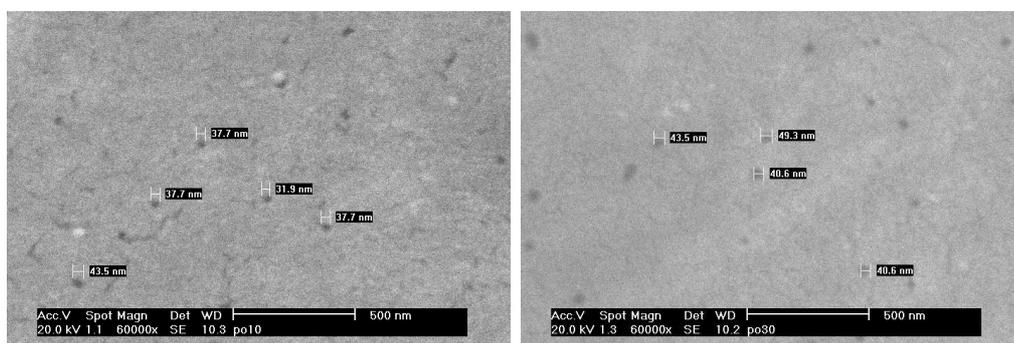


FIG. 2.2 – Image SEM de la membrane PO10 (à gauche) et PO30 (à droite). Le diamètre des pores est plus grand que la valeur nominale

beaucoup moins épaisse, environ de 50nm . Sa présence réduit considérablement la densité des pores ouverts sur la surface (mais pas tous), une condition favorable pour contacter un seul nanofil.

Les couches d'or sont déposées par la méthode pulvérisation cathodique en utilisant le *Sputter Coater* EMITECH K550x [75]. Le K550x utilise un système magnétron afin de créer du plasma froid, ce qui rend la taille des grains plus petite ($\sim 2\text{nm}$), et surtout, une température de fonctionnement plus basse pour ne pas endommager la membrane polycarbonate. Nous utilisons de l'argon, un gaz neutre, afin de déposer de l'or pur. Il est aussi équipé d'une pompe à vide intégrée ce qui rend le cycle de dépôt complètement automatique : pomper à vide l'enceinte de dépôt jusqu'à $1 \times 10^{-2}\text{mbar}$, la remplir avec de l'argon et maintenir la pression à $1 \times 10^{-1}\text{mbar}$, la déposition se fait en bombardant la cible d'or avec des ions Ar^+ à un courant de déposition 40mA , pendant 4 minutes, ce qui dépose une couche d'or de l'ordre 50nm d'épaisseur (Fig. 2.4) sur la membrane, puis remettre la pression de l'enceinte de dépôt à celle de l'atmosphère. Pendant la déposition, la porte échantillon tourne afin d'augmenter l'homogénéité de la couche d'or déposée. La qualité des contacts électrique du nanofil dépend celle des couches d'or, qui est à son tour très sensible à l'état de la cible et au niveau du vide dans l'enceinte de dépôt. Par exemple, quand nous sommes en rupture de stock de cible d'or, plusieurs essais sont faits avec une cible usagée et nous n'arrivons pas à contacter aucun échantillon. Il est donc de préalable de faire un premier cycle de dépôt sans échantillon afin de nettoyer la surface de la cible d'or et l'enceinte de dépôt.

Après l'électrodéposition, toutes les manipulations directes sur la membrane risquent de casser le nanofil ou le nanocontact à cause de la souplesse de la membrane polycarbonate. Avant l'électrodéposition, il faut fixer la mem-

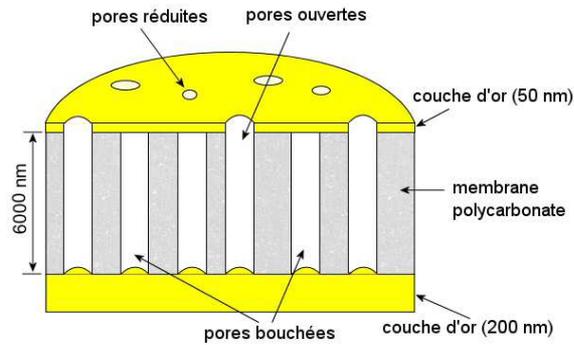


FIG. 2.3 – Membrane polycarbonate après la déposition de deux couches d'or. La couche épaisse au-dessous est utilisée comme une cathode, et la couche mince au-dessus permet de réduire le nombre de pores, donc de faciliter le contact simple.

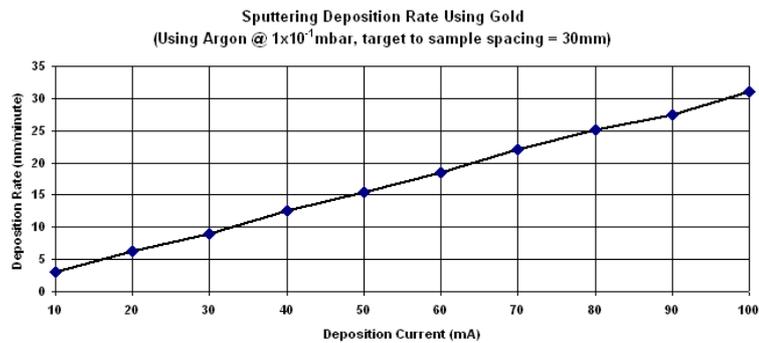


FIG. 2.4 – Vitesse de déposition d'or par le K550x en fonction du courant de déposition, pression de l'argon à 1×10^{-1} mbar, substrat posé à 3cm du cible d'or.

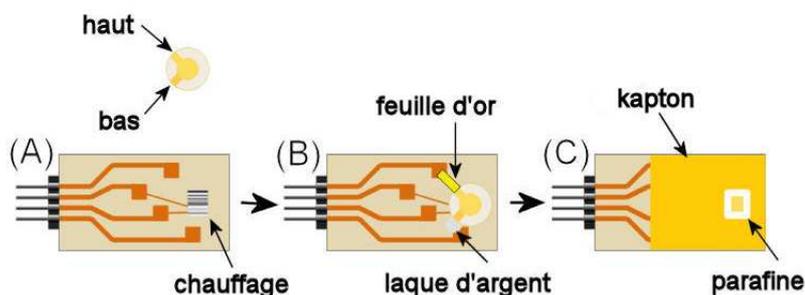


FIG. 2.5 – La membrane est fixée sur le support en plusieurs étapes : (A) - coller la membrane en utilisant du scotch double faces, (B) - établir des contacts électrique à l'aide des petites feuilles d'or et des laques d'argent, (C) - entourer la membrane avec du kapton (scotch isolant) et de la paraffine afin d'isoler le bas de la membrane.

brane sur un support rigide afin de pouvoir faire les mesures sans aucune autre manipulation.

Le support est une plaquette silicate imprimée quatre bandes de cuivre et soudée (avec de l'étain) de quatre broches de cuivre afin de pouvoir brancher sur la canne de mesure (voir Fig. 4.2), comme montrée sur la figure 2.5. La bande de cuivre à gauche est connectée avec la patte d'or du haut et celle à droite avec la patte d'or du bas de la membrane. Les deux bandes au milieu sont utilisées pour alimenter un élément chauffant résistif afin de chauffer le bas de la membrane.

Cet élément chauffant est très simple : pour transformer l'énergie électrique en chaleur, il suffit de faire passer le courant dans un fil dont la résistance est suffisante pour obtenir le dégagement de chaleur requis (effet Joule). Le dégagement de chaleur est proportionnel à la résistance du conducteur $R = \rho l/A$, où ρ est la résistivité du matériau, l est la longueur et A est la section du fil. Il y a donc trois possibilités pour obtenir une résistance élevée :

- * Prendre un fil long mais ce sera encombrant
- * Prendre un fil fin, mais ça risque de casser lors des manipulations
- * Choisir un matériau dont la résistivité est forte. Nous avons donc choisi cette possibilité et pris un fil de constantan car sa résistivité est grande et ne dépend pas de température ($\simeq 50 \cdot 10^{-8} \Omega m$, près de trente fois plus grande que celle du cuivre).

Il s'agit d'enrouler un fil de constantan de $10cm$ de longueur et $5 \cdot 10^{-3} mm^2$ de section, donc la résistance est de $\simeq 12 \Omega$ sur une feuille mince de mica (isolant). Après enroulement, la taille du chauffage est de $2mm \times 2mm$. Avant

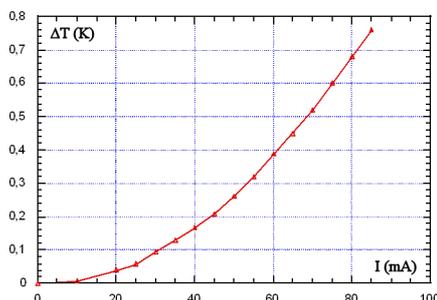


FIG. 2.6 – La différence de température générée par le chauffage en fonction de l'intensité du courant de chauffage.

de bobiner le fil, il faut d'abord tremper le fil dans du vernis pour éviter des courts-circuits. Pour éviter l'effet magnétique des résistances bobinées, le fil est plié en deux et torsadé avant de le bobiner. L'effet magnétique est ainsi annulé puisque des courants de sens contraire circulent dans les deux fils placés côte à côte. Sur la surface du chauffage, nous mettons aussi une couche mince de vernis afin d'avoir un échauffement plus homogène et pour l'isolation électrique. La calibration du chauffage est montrée sur la figure 2.6

2.4 Electrodeposition et in-situ contact

Les différents types de nanofils sont fabriqués par un seul dispositif en utilisant le bain électrolyte correspondant. L'électrodeposition se fait par un potentiostat/galvanostat HEKA PG310[76], l'appareil qui contrôle les trois électrodes : l'électrode de référence Ag/Cl, l'électrode d'auxiliaire en or et l'électrode de travail : la couche d'or au-dessous de la membrane (Fig. 2.7).

Le mode potentiostatique est utilisé pour l'électrodeposition des nanofils. Le potentiel appliqué varie selon le matériau dont qu'on fait croître (Tab. 2.2). Dans un bain électrolyte contenant une seule espèce d'ions, on fixe cette valeur afin d'obtenir des nanofils homogènes. En utilisant un bain mixte, i.e. un bain qui contient deux espèces d'ions différentes, on peut aussi faire varier alternativement entre deux potentiels de déposition correspondants afin de construire des multicouches (une hétéro-structure) comme Co/Cu/Co par exemple. Il est évident que cette méthode ne fonctionne que dans le cas où les deux potentiels de déposition sont nettement différents et, heureusement, c'est le cas de Co/Cu. La concentration de Co (moins réactif, potentiel de déposition $V_{dep} \sim -1.0V$) dans le bain mixte est très élevée (à saturation).

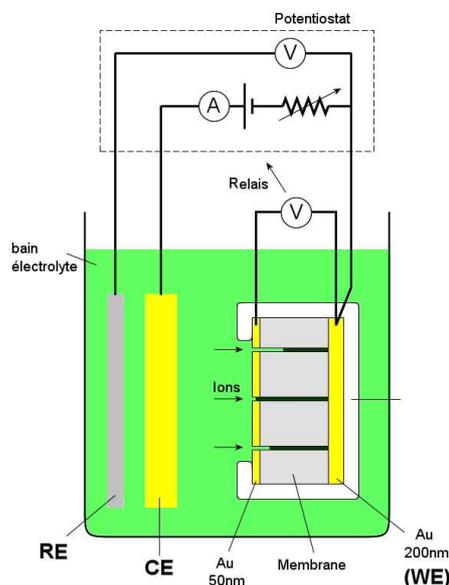


FIG. 2.7 – Dispositif d'électrodéposition : RE - électrode de référence Ag/AgCl; CE - électrode d'auxiliaire en or; WE - électrode de travail

Matériau	Ni	Co	Cu
V_{dep}	-1.0V	-1.0V	-0.3V

TAB. 2.2 – Potentiel de déposition pour des métaux différents

Par contre, celle de Cu (plus réactif, $V_{dep} \sim -0.3V$) est beaucoup plus basse. A $-0.3V$ seulement les ions Cu^{2+} sont électrodéposés, alors à $-1.0V$, les ions Co^{2+} et les ions Cu^{2+} sont simultanément électrodéposés. La faible concentration de Cu permet de ne pas électro-déposer une large quantité de Cu dans la couche de Co. A l'aide du mode EDX de microscope, on détermine que la couche de Co contient 15% de Cu et 1% de Co dans celle de Cu. En fait, le Cu est plus réactif que le Co, mais Co dissout lorsque le potentiel est baissé, provoquant l'impureté de Co dans la couche de Cu. L'épaisseur de chaque mono-couche est contrôlée via le temps de déposition en supposant que la vitesse de déposition est constante. Lors d'une calibration préalable, nous la déduisons en divisant la longueur des pores ($6\mu m$) par le temps nécessaire pour le remplir.

La figure 2.8 montre le profil typique du courant d'électrodéposition. Il est similaire pour la déposition des métaux. Il commence par un pic de courant

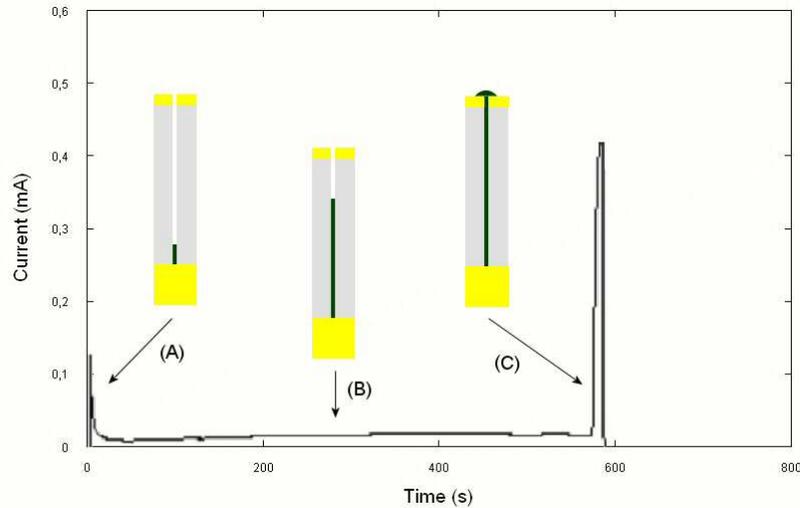


FIG. 2.8 – Profil typique du courant d'électrodéposition pour obtenir des nanofils homogènes dans des membranes polycarbonate nanoporeuse

(2.8-A) à cause des effets capacitifs (charge accumulation avec une constante de temps assez longue). Le courant est descendu après $\sim 1s$. Puis, il augmente progressivement (2.8-B) dû à l'augmentation de la surface effective de l'électrode par nucléation de plus en plus des fils. Dès que les nanofils émergent des pores et atteignent la surface, la couche d'or au-dessus de la membrane court-circuite l'électrode du dessous. Par conséquent, la déposition s'étend sur toute la surface de la couche d'or au-dessus de la membrane mais plus dans les pores. Le changement de l'aire de la surface de déposition entraîne donc une forte augmentation du courant de déposition (2.8-C), ce qui identifie le moment où les nanofils se sont contactés. Cependant, la déposition sur la surface produit un contact multiple des nanofils. Dès que le premier contact s'est établi, l'électrodéposition s'est arrêtée automatiquement afin d'avoir un seul nanofil contacté (un contact simple). Pendant l'électrodéposition, la différence de potentiel entre les deux couches d'or de la membrane est surveillée à l'aide d'un voltmètre flottant (afin d'éviter des boucles de masse et des fluctuations qui sont défavorables pour un bon contact simple). Le voltmètre est connecté à un comparateur qui contrôle ensuite un interrupteur relié à l'électrode de travail. Lorsque la différence de potentiel, entre les deux couches d'or, tombe au-dessous d'une valeur de seuil, définie empiriquement, le potentiel appliqué est coupé par l'interrupteur dans le relais, et l'électrodéposition s'est arrêtée. La valeur de seuil est un compromis entre un potentiel seuil élevé qui garantit un contact simple mais implique un contact

plus fragile et un potentiel seuil bas qui rend le contact plus solide mais augmente aussi la probabilité de contacter plusieurs nanofils en parallèle. Une valeur de seuil entre $60mV$ et $80mV$ nous donne souvent un bon contact simple pour les nanofils magnétique produits dans ce travail.

Il est évident que la possibilité d'avoir un contact multiple est proportionnelle à la densité des pores. Il faut donc que la couche d'or au-dessus de la membrane ne soit ni trop mince car elle sert à réduire le nombre des pores afin de favoriser un contact simple, ni trop épaisse car elle risque de boucher tous les pores. A cause de cela, il est important de vérifier la pression d'argon (2.3) afin d'obtenir une épaisseur souhaitée.

Chapitre 3

Bases théoriques

Comme ce travail est lié à plusieurs domaines de la physique : le ferromagnétisme, le micro-magnétisme, le transport électronique, le transport thermique, la thermoélectricité ..., nous allons aborder dans ce chapitre des phénomènes physiques, des notions, des définitions, des termes ... qui sont nécessaires pour faciliter la lecture de cette thèse.

3.1 Introduction au ferromagnétisme

3.1.1 Ferromagnétisme à l'échelle macroscopique

Dans les matériaux ferromagnétiques, le cas des métaux de transition type $3d$ comme le nickel (Ni) ou le cobalt (Co), il y a des interactions dites *d'échange positives* qui favorisent le parallélisme des moments magnétiques des atomes voisins. Tout se passe comme si un champ magnétique, appelé *champ moléculaire*, alignait les moments.

A haute température, l'agitation thermique conduit à une susceptibilité magnétique $\chi_H = \partial M / \partial H$ similaire à celle d'un paramagnétique (*loi de Curie-Weiss*) : $\chi_H(T) = \frac{C}{T - T_C}$, où C et T_C est la constante de Curie et la température de Curie pour le matériau en question, T est la température absolue. En dessous de la température de Curie T_C , les interactions dominent les agitations thermiques et une *aimantation spontanée* (M) apparaît en *l'absence de champ appliqué*. L'aimantation atteint sa valeur maximale M_s lorsque tous les moments individuels sont parallèles. La température de Curie pour le Ni et Co sont respectivement de $T_C^{Ni} \simeq 630K$ et $T_C^{Co} \simeq 1400K$ [81]. Dans le cadre de ce travail, la température varie juste autour de celle de l'ambiance ($\sim 300K$) ce qui signifie que nous sommes toujours dans la condition ferromagnétique.

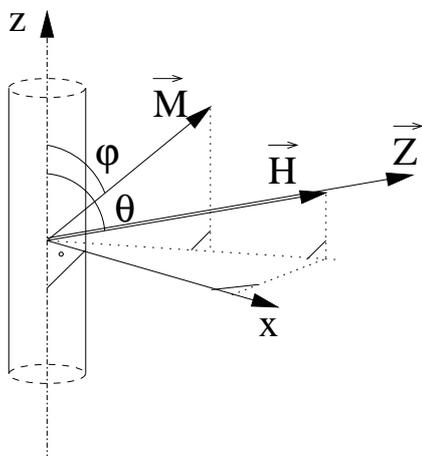


FIG. 3.1 – Orientation de l'aimantation et du champ magnétique appliqué par rapport à l'axe facile d'aimantation.

Malgré l'existence d'une aimantation spontanée en dessous de T_C , une substance ferromagnétique n'est pas toujours spontanément aimantée : son moment magnétique total peut être nul, on dit alors que le matériau est désaimanté. Ceci résulte du fait que l'intérieur du matériau est divisé en domaines magnétiques, appelés *domaines de Weiss* ; chaque domaine, qui comporte un grand nombre d'atomes, est spontanément aimanté. D'un domaine à l'autre la direction des moments, c'est-à-dire de l'aimantation spontanée locale, varie de sorte que le moment magnétique total est nul. Il faut donc appliquer un champ magnétique pour aligner la première fois tous les moments magnétiques, autrement dit, pour qu'elle soit aimantée.

3.1.2 Ferromagnétisme à l'échelle microscopique

Sans aucune perte de caractère physique du système, un fil cylindrique peut très bien modéliser par un *sphéroïde prolate* (ellipsoïde de rotation) très long avec l'axe facile dans la direction z . L'orientation de l'aimantation \vec{M} et du champ magnétique appliqué est définie par l'angle φ et θ par rapport à l'axe facile (Fig. 3.1).

L'état magnétique à l'équilibre de l'aimantation est défini par la minimisation de la densité d'énergie : $\frac{\partial \eta}{\partial \vec{M}} = 0$, où \vec{M} est l'aimantation spontanée par unité de volume, cette grandeur est supposée invariante en présence d'un champ magnétique extérieur. Dans les cas simples (pas de magnétostriction par exemple), la densité d'énergie totale de ce système est la somme de quatre termes : le terme d'échange, le terme de Zeeman, le terme anisotropie et le

terme magnétostatique.

Chacun de ces termes de densité d'énergie η_t peut être écrit sous la forme : $\eta_t = -\vec{H}_t \cdot \vec{M}$, donc chacun peut associer avec un champ magnétique H_t . Lorsque H_t est associé à un terme d'énergie anisotropie, il s'appelle donc un *champ d'anisotropie* et son amplitude est égale à ce qu'on appelle *champ coercitif* dans le cas où le fil et le champ sont alignés. C'est le principe de minimisation d'énergie qui fait aligner l'aimantation avec le champ magnétique total, la somme du champ magnétique extérieur et les autres contributions.

La densité d'énergie d'échange vient de l'interaction coulombienne quantique entre les atomes voisins. L'interaction est due au recouvrement de la fonction d'onde électronique et à la principe d'exclusion des fermions. Ce terme est donné par des valeurs propres de l'hamiltonien de Heisenberg. A cause de ce terme, chaque spin cherche à aligner les spins voisins dans sa direction.

$$H = - \sum_{i,j;i \neq j} \vec{S}_i \vec{S}_j \quad (3.1)$$

La densité d'énergie de Zeeman est donnée par l'interaction du champ magnétique appliqué \vec{H} avec l'aimantation :

$$\eta = \vec{H} \cdot \vec{M} \quad (3.2)$$

Si le champ magnétique extérieur est suffisamment fort, l'énergie du terme de Zeeman devient très important. On peut donc négliger l'énergie des autres termes. Il est de ce fait possible d'aligner l'aimantation du système le long du champ magnétique extérieur. On dit alors que le système est saturé.

La densité d'énergie anisotropie vient de l'anisotropie magnéto-cristalline qui est due pour l'essentiel au couplage spin orbite et au champ cristallin qui introduisent des termes correctifs au niveau d'énergie dans le cristal. Ceux-ci dépendent de l'orientation du moment par rapport aux axes cristallins. Il existe donc dans un cristal des directions d'aimantation qui minimisent l'énergie. Ces axes sont appelés *direction facile d'aimantation*. Par exemple, pour le Ni l'axe facile d'aimantation est selon la direction cristallographie [111]. Cette direction détermine le sens de l'aimantation spontanée. Il existe donc 8 directions de facile aimantation pour le Ni ¹ (suivant les 4 diagonales, dans les deux sens).

L'étude par diffraction des rayons X [70] montre que les nanofils de nickel électrodéposé ont une *structure poly-cristalline*, donc l'énergie magnéto-cristalline s'annule, et le champ magnétique associé est zéro. Ce n'est pas le cas pour le Co.

¹La structure cristalline du Ni est cubique à face centrée

La densité d'énergie magnétostatique ou anisotropie de forme est générée par la présence des pôles magnétique sur la surface de l'échantillon. Le champ magnétique généré par l'aimantation de l'échantillon est appelé le champ de démagnétisation \vec{H}_d (illustré sur la figure 3.2) :

$$\vec{H}_d = -\underline{N}\vec{M} \quad (3.3)$$

où \underline{N} est le tenseur d'anisotropie de forme.

Ce champ de démagnétisation modifie le champ magnétique intérieur et génère un terme de densité d'énergie qui dépend la géométrie de l'échantillon. Pour un ellipsoïde uniformément magnétisé, on a :

$$\eta = \frac{1}{2}(M_x^2 N_x + M_y^2 N_y + M_z^2 N_z) \quad (3.4)$$

donc pour un sphéroïde prolata :

$$\eta = \frac{1}{2}(M^2(N_z - N_x)\cos^2\varphi + M^2 N_x) = \frac{1}{2}M^2(1 - 3N_x + \text{const}) \quad (3.5)$$

où M_z est la projection de l'aimantation sur l'axe du fil et $N_x = N_y = \frac{1-N_z}{2}$. Ca donne le champ associé :

$$H_a = (N_z - N_x)M = (1 - 3N_z)M \quad (3.6)$$

La présence des pôles magnétiques à la surface génère aussi un champ magnétique extérieur. On peut calculer approximativement par la contribution dipolaire \vec{H}_{dip} :

$$\eta = \vec{H}_{dip} \cdot \vec{M} = \frac{1}{4\pi\mu_0 x^3} \left[(\vec{M}_0 \vec{M}) - \frac{3}{x^2} (\vec{M}_0 \vec{x})(\vec{M} \vec{x}) \right] \quad (3.7)$$

L'énergie d'échange agit à une échelle courte et favorise l'uniformité de l'aimantation dans le cristal. Par contre, l'énergie magnétostatique, qui a une longue portée, favorise la formation des domaines magnétiques. C'est pourquoi dans des particules grandes, les domaines se forment dès que le champ magnétique appliqué devient faible. Lorsque la taille d'une particule est plus petite que certaine valeur, elle devient *mono-domaine* car c'est l'énergie d'échange qui domine.

D'après la théorie de domaine, l'estimation de la taille critique avant que les domaines apparaissent dans une particule sphérique ou cubique est l'épaisseur de parois de domaine [78] :

$$\delta = \pi \sqrt{\frac{C}{K}} \quad (3.8)$$

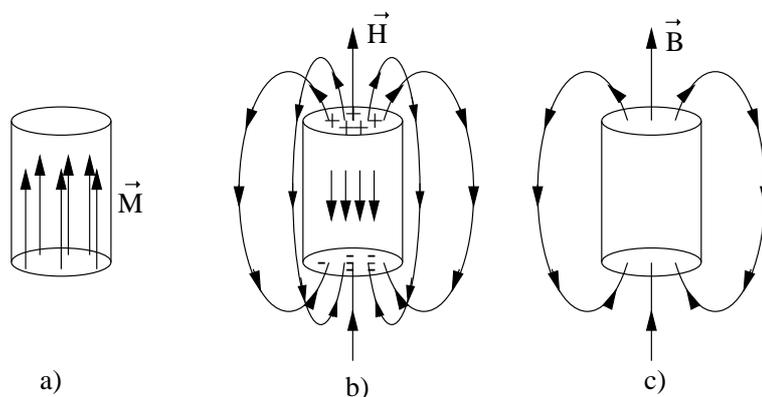


FIG. 3.2 – Champ démagnétisant d’un échantillon cylindrique court ayant une aimantation \vec{M} . (a) Les pôles magnétiques qui apparaissent en surface induisent la distribution de champ magnétique représentée en (b). À l’intérieur de l’échantillon les champs magnétiques s’opposent à l’aimantation. La distribution spatiale de l’induction \vec{B} est représentée en (c).

où : C est une fonction de la constante d’échange quantique J , K est la constante de l’anisotropie. Ceci donne $\delta \simeq 150nm$ pour nickel, $\delta \simeq 15nm$ pour cobalt et $\delta \simeq 150nm$ pour permalloy. Donc, chaque nanofil de nickel étudié est un mono-domaine magnétique car le diamètre du nanofil est inférieur à la taille critique. En conséquence, tous les moments magnétique s’alignent. Alors, toute variation d’aimantation ne peut résulter que d’une rotation uniforme des moments magnétique. L’état magnétique du fil est donc décrit par le modèle de Stoner-Wohlfarth que je vais présenter dans la suite de ce travail.

3.1.3 Influence d’anisotropie

Si le matériau est aimanté le long de l’axe z (axe de facile aimantation), un champ magnétique appliqué \vec{H} dans une direction différente de z va avoir tendance à faire tourner l’aimantation, alors que le terme d’anisotropie s’oppose à cette rotation. Si le champ appliqué est le long de l’axe de facile aimantation, il va stabiliser cette aimantation s’il est dans le même sens que l’aimantation. Par contre, si on le fait décroître et ensuite renverser le sens, il va favoriser alors l’aimantation dans la direction opposée. Il y aura donc une valeur du champ pour la quelle l’aimantation se renverse. Nous verrons que l’existence du terme d’anisotropie fait apparaître un hystérésis magnétique.

On peut calculer le comportement de l’aimantation en fonction du champ

appliqué en remarquant que, comme le nanofil de Ni est un mono-domaine magnétique, l'interaction d'échange est suffisamment forte pour que les spins restent parallèles et que l'aimantation macroscopique se comporte comme un vecteur de module M_0 constant. Dans ce cas, l'influence du champ se traduira seulement par **une rotation de l'aimantation macroscopique** pour les états à l'équilibre. Ceci permet un traitement classique des termes d'anisotropie et d'interaction avec le champ. Supposons l'axe d'aimantation facile aligné selon \vec{Oz} et $\varphi = (\vec{Oz}, \vec{M})$ comme indiqué sur la figure 3.1.

Dû à la géométrie spécifique du nanofil, le champ démagnétisant ne peut qu'être parallèle avec l'axe du nanofil (aussi l'axe facile d'aimantation z). Il y a donc seulement la composant selon l'axe z du tenseur d'anisotropie (N) (voir l'équation 3.3) qui est non nul. A partir de l'équation 3.5, l'énergie anisotropie est réécrit de façon suivante :

$$E_{an} = K \cos^2 \varphi \quad (3.9)$$

où : K - énergie d'anisotropie macroscopique par unité de volume. Moyennant un décalage de zéro des énergies, on peut prendre pour énergie d'anisotropie :

$$E_{an} = K \sin^2 \varphi \quad (3.10)$$

La valeur minimale nulle de E_{an} étant obtenue lorsque \vec{M} est le long de l'axe facile aimantation.

Appliquons le champ magnétique suivant une direction \vec{OZ} , avec une valeur algébrique H . L'énergie de Zeeman couplée l'aimantation avec le champ appliqué est donné par :

$$E_Z = -\mu_0 H M_s \cos(\theta - \varphi) \quad (3.11)$$

où $\theta = (\vec{Oz}, \vec{H})$

Energie totale du système est donc la somme de ces énergie :

$$E = E_{an} + E_Z = K \sin^2 \varphi - \mu_0 H M_s \cos(\theta - \varphi) \quad (3.12)$$

Les états équilibres de l'aimantation sont donnés en minimisant l'énergie totale. Autrement dit, l'angle φ , qui détermine la position d'équilibre de l'aimantation à une valeur du champ magnétique extérieur donnée, est la solution de l'équation :

$$\frac{dE}{d\varphi} = K \sin 2\varphi - \mu_0 H M_s \sin(\theta - \varphi) = 0 \quad (3.13)$$

L'équation ci-dessus décrit la rotation uniforme de l'aimantation dans la partie réversible du cycle d'hystérésis. Si on pose : $\mu_0 H_a = 2K/M_s$ et $h = H/H_a$, l'équation 3.13 devient :

$$2h \sin(\theta - \varphi) = \sin 2\varphi \quad (3.14)$$

Remarquons que les équilibres sont stables si $d^2E/d\varphi^2 > 0$ et instables si $d^2E/d\varphi^2 < 0$. Le point d'inflexion est donné par :

$$\frac{d^2E}{d\varphi^2} = 2K \cos 2\varphi + \mu_0 H M_0 \sin(\theta - \varphi) = 0 \quad (3.15)$$

En remplaçant $\mu_0 H_a = 2K/M_0$ et $h = H/H_a$, nous obtenons :

$$h \cos(\theta - \varphi) = -\cos 2\varphi \quad (3.16)$$

A ce point d'inflexion, l'aimantation va basculer d'un état métastable à un état stable (une branche réversible du cycle d'hystérésis à l'autre). On appelle ainsi un "saut" irréversible d'aimantation. La valeur du champ magnétique correspondant est appelé *champ de saut*.

L'équation 3.15 est souvent appelée le *modèle de Stoner-Wohlfarth* (1949) du retournement de l'aimantation. La solution simultanée des équation 3.13 et 3.15 est obtenue lorsque :

$$\tan(\theta - \varphi) = \frac{-\tan \varphi}{1 - \tan^2 \varphi} \quad (3.17)$$

ce qui conduit à un basculement de l'aimantation pour $\varphi = \varphi_b$ et $h = h_b$ donnés par :

$$\tan^3 \varphi_b = -\tan \theta \quad (3.18)$$

$$h_b^2 = 1 - (3/4) \sin^2 2\varphi_b \quad (3.19)$$

Dans le cas simple ($\theta = 0$) le champ qui est appliqué le long de Oz, $\varphi = 0$ pour tout $h > 0$. Si l'on inverse le champ, le basculement se produit pour $\varphi_b = 0$ et $h_b = -1$. Si on augmente alors le champ à partir de $h > -1$ avec $\varphi = \pi$, l'aimantation est stable jusqu'à $h = 0$. Après inversion du champ le basculement se produit pour $h_b = 1$. Il y a donc un cycle d'hystérésis rectangulaire avec inversion de l'aimantation pour $H = \pm H_a$. L'autre cas extrême est lorsque ($\theta = 90^\circ$), il n'y a alors aucune hystérésis (voir Fig. 3.3)

De façon générale, la composante de l'aimantation le long de la direction du champ magnétique :

$$M(\theta) = M_s \cos(\theta - \varphi) \quad (3.20)$$

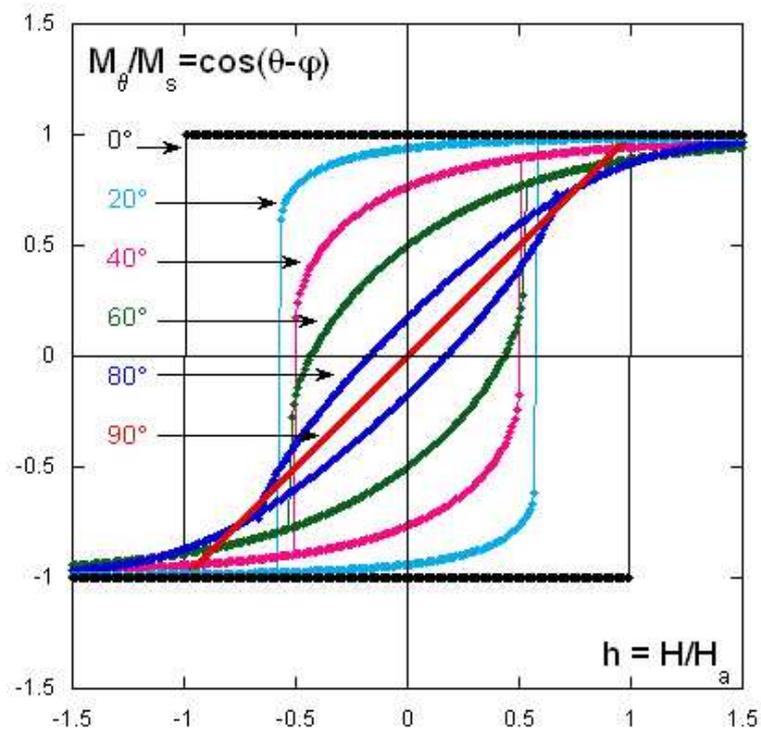


FIG. 3.3 – Cycle d’hystérésis de la composante de l’aimantation d’un nanofil magnétique monodomaine le long de l’axe du champ appliqué, en fonction de l’angle θ de cet axe avec l’axe de facile aimantation : $m = \frac{M_\theta}{M_s}$, $h = \frac{H}{H_a}$. (Simulation numérique avec le modèle Stoner-Wohlfarth)

suit un cycle d'hystérésis que l'on peut calculer à partir des équations ci-dessus (voir Fig. 3.3).

Dans le modèle Stoner-Wohlfarth, il y a seulement un paramètre : le champ d'anisotropie H_a . En raison de sa simplicité, ce modèle sert en général de référence aux autres descriptions théoriques possibles du renversement d'aimantation (par exemple le modèle Curling décrit par Aharoni [80]). Ce travail focalise seulement sur la partie réversible du cycle d'hystérésis et la description de l'aimantation par une rotation uniforme est suffisante pour décrire les états magnétiques correspondants.

Les figures 3.3 et 3.4 sont obtenues avec le programme présenté dans l'annexe A

3.2 Magnéto-résistance anisotropie

3.2.1 Origine physique de la magnéto-résistance dans des particules magnétiques homogènes

Une des phénomènes physiques le plus exploité dans ce travail est la *magnéto-résistance anisotropique* (AMR). Dans ce contexte, la magnéto-résistance réfère à la variation de résistance d'un échantillon ferromagnétique pendant un cycle d'hystérésis magnétique. (Il faut préciser sur ce point afin de ne pas confondre avec la variation de résistance d'un conducteur sous l'influence directe d'un champ magnétique appliqué sur des électrons de conduction, comme l'effet Hall par exemple). Il devrait s'appeler plutôt *ferro-magnéto-résistance* : la variation de résistance d'un ferromagnétique dû au changement de l'état magnétique. A ce jour, le terme magnéto-résistance est souvent associé à la magnéto-résistance dans un ferromagnétique.

Conformément à l'explication acceptée [14, 77], la *magnéto-résistance anisotropique* d'un matériau poly-cristallin massif est bien approximativement proportionnel à $\cos^2\varphi$, où φ est défini comme l'angle entre la direction du courant et l'aimantation $\vec{M}(\vec{H})$, en fonction de champ magnétique appliqué \vec{H} . Cela vient du fait que le tenseur de résistivité du matériau massif est bien symétrique.

Si l'aimantation est uniforme et mesurée le long de l'axe du courant, la magnéto-résistive courbe $R(\vec{H})$ est simplement reliée à l'aimantation $M(\vec{H})$. Dans le cas où $M(\vec{H}) = M_s \cos\varphi$, où M_s est l'aimantation à saturation, la magnéto-résistance devient :

$$R(\vec{H}) = R(H, \theta) = R_{\perp} + \Delta R \cos^2\varphi \quad (3.21)$$

où : θ est l'angle entre \vec{H} et la direction du courant électrique ; R_{\perp} est la

résistance lorsque l'aimantation saturée est perpendiculaire au courant et $\Delta R = R_{//} - R_{\perp}$ avec $R_{//}$, la résistance lorsque l'aimantation saturée est parallèle au courant. Dans le cas d'un fil long mono-domaine, on peut définir : $R_{max} = R_{//} = R(H_{sat}, \theta = 0^0)$ et $R_{min} = R_{\perp} = R(H_{sat}, \theta = 90^0)$. Alors, l'AMR est définie de façons suivante :

$$AMR = \frac{\Delta R}{R_{max}} = \frac{R_{max} - R_{min}}{R_{max}} = \frac{\rho_{//} - \rho_{\perp}}{\rho_{//}} \quad (3.22)$$

où : $\rho_{//}$ est la résistivité lorsque l'aimantation est parallèle avec le courant électrique et ρ_{\perp} est celle où l'aimantation est perpendiculaire au courant électrique. Dans le meilleur des cas, AMR d'un fil *permalloy* peut atteindre 5% et autour de 2% pour un fil de nickel [14].

La magnétorésistance anisotropie est un effet dû à l'anisotropie du couplage spin-orbite qui résulte à son tour la dépendance de résistance en angle entre le courant et l'aimantation.

Un modèle de l'origine d'AMR des alliages des métaux ferromagnétiques de transition (*métaux 3d*) consiste à considérer que les bandes de conduction des électrons s_+ et s_- sont des canaux indépendants (i.e. sans relaxation de spin entre les canaux) et que les électrons 3d sont localisés [14]. Le tenseur de conductivité est :

$$j_i = \sigma_{ij} E_j = - \int e \vec{v} f d^3 \vec{k} \quad (3.23)$$

où $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$ est la fonction de distribution de la population d'électrons donné par l'équation de Boltzmann :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} + \vec{F} \frac{1}{\hbar} \frac{\partial f}{\partial \vec{k}} = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{col} \quad (3.24)$$

$\vec{v}(\vec{k})$ est la vitesse de l'électron et $\vec{F} = -e(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B})$ est la force exercée sur l'électron ; $\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{col}$ est le terme de collision et souvent évalué à partir du temps de relaxation :

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{col} = - \frac{f - f_0}{\tau} \quad (3.25)$$

Pour des petites déviations de l'équilibre, Eq. 3.24 peut résoudre en admettant que la réponse est linéaire : $f = f_0 + g$, où $f_0(\vec{r}, \vec{k})$ est la solution d'équation 3.24 en cas d'équilibre et g est la déviation à partir d'équilibre.

L'hypothèse de petite perturbation permet de trouver le temps de relaxation dans des métaux ferromagnétiques 3d :

$$\frac{1}{\tau_n} = a_n \cos^2 \varphi + b_n \cos^4 \varphi + c_n (k_y^2 k_z^2 + k_z^2 k_x^2 + k_x^2 k_y^2) \quad (3.26)$$

où : φ est l'angle entre l'aimantation et le courant ; les coefficients a_n, b_n, c_n dépendent la constante du couplage spin-orbite.

En remplaçant le temps de relaxation obtenu dans l'équation précédente, nous pouvons calculer des composantes du tenseur de conductivité, ainsi la conductivité longitudinale $\sigma_{//}$ et la conductivité transversale σ_{\perp} .

Ce résultat général pour des métaux de transition 3d a été appliqué à l'AMR à basse température [77]. L'équation de Boltzmann est résolue en tenant compte d'une surface de Fermi sphérique et en supposant qu'il y a que les électrons au niveau de Fermi participent au courant, comme pour un gaz d'électron libre. ça nous donne :

$$\tau^{\sigma} = \frac{\lambda^{\sigma}}{v_F} \quad (3.27)$$

où : λ^{σ} est le libre parcours moyen d'un électron de spin σ , et v_F est la vitesse associée avec l'énergie au niveau de Fermi ($E_F = \frac{1}{2}mv_F^2$) de cet électron, supposée indépendante de spin *up* ou *down*. En appliquant les conditions aux limites, on a :

$$\lambda^{\sigma}(\varphi) = \lambda_0^{\sigma}(1 - a^{\sigma}\cos^2(\varphi)) - b^{\sigma}\cos^4(\varphi) \quad (3.28)$$

A partir des équations 3.27,3.28 et 3.23, on peut calculer la conductivité σ_{ω} , ce qui donne $\sigma_{//}$ avec $\varphi = 0^{\circ}$ et σ_{\perp} avec $\varphi = 90^{\circ}$.

Les constantes phénoménologiques $\lambda_0^{\sigma}, a^{\sigma}$ et b^{σ} sont déterminées en mesurant la dépendance angulaire et en spin de la résistivité.

3.2.2 AMR dans les nanofils

La relation reliant la résistance R et le champ magnétique appliqué H dans des nanofils ferromagnétiques est la suivante :

$$R(H) = R_0 + \Delta R_{max} \left(\frac{M_{\varphi}(H)}{M_s} \right)^2 \quad (3.29)$$

où : $M_{\varphi} = M_s \cos \varphi$ est le composant de l'aimantation sur l'axe du nanofil Cette relation permet de relier l'hystérésis magnéto-résistive $R(H)$ à l'hystérésis magnétique $M(H)$ dans le cas d'une aimantation uniforme. Par la comparaison des courbes magnétiques et magnéto-résistives, il a été montré que les mesures d'AMR pouvaient être utilisées comme sonde nanoscopique pour étudier l'aimantation. Une simulation numérique qui nous a permis de mettre en évidence la relation entre la magnéto-résistance et l'aimantation du fil est présentée sur la figure 3.4.

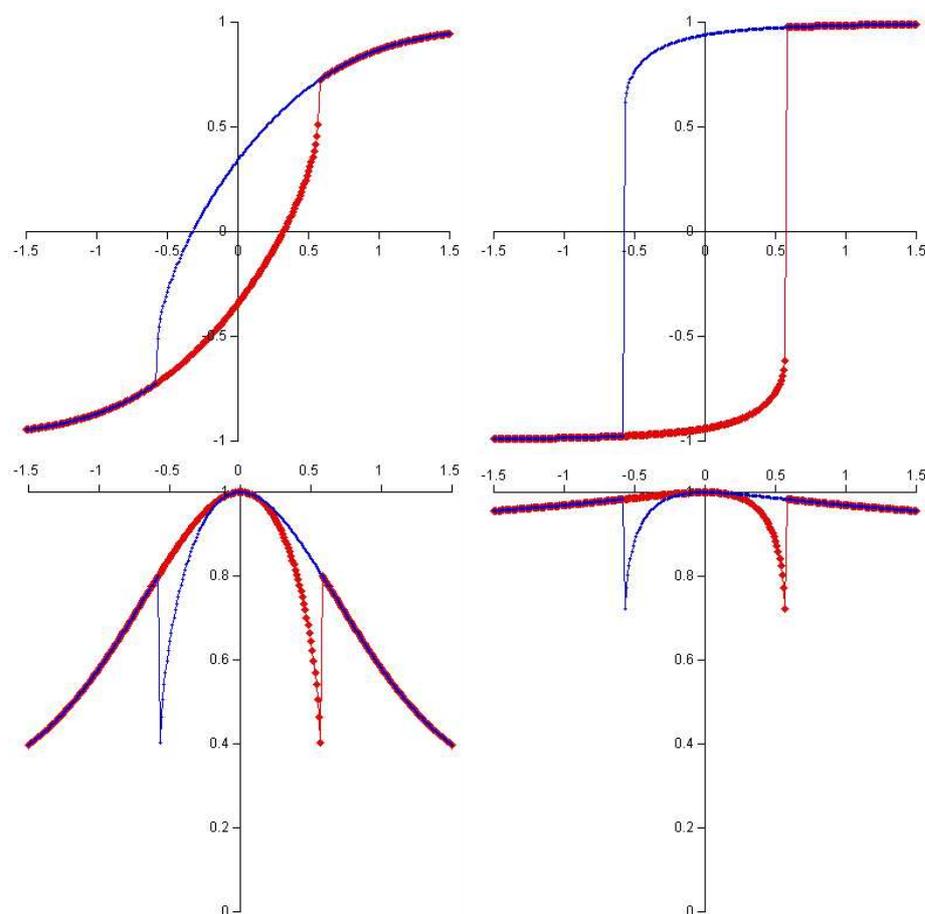


FIG. 3.4 – Cycle d’hystérésis de la composante de l’aimantation d’un fil monodomaine magnétique le long du champ appliqué pour un angle θ entre l’axe de facile aimantation et le champ appliqué. Nous avons reporté $m = M_\theta / M_{sat}$ (en haut) et $\Delta R / \Delta R_{max} = (R - R_\perp) / (R_\parallel - R_\perp)$ (en bas) en fonction de $h = H / H_a$. Le calcul numérique est fait avec le modèle de rotation uniforme de Stoner-Wohlfarth pour $\theta = 70^\circ$ (à gauche) et pour $\theta = 20^\circ$ (à droite). Les points en rouge sont pour h varie de $-h_{max}$ à $+h_{max}$, ceux en bleu sont pour le sens inverse.

Avec l'approche statistique à température non nul, le composant de l'aimantation sur l'axe du nanofil est donné par :

$$M = M_s \langle \cos \varphi \rangle = M_s 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \sin \varphi d\varphi \quad (3.30)$$

où : $\langle \cos \varphi \rangle$ est la valeur moyenne de $\cos \varphi$, $V(H, \varphi)$ est l'énergie total du system dans l'équation 3.12, $Z = Z(H, T) = 2\pi \int_0^\pi e^{-V(H,\varphi)/k_B T} \sin \varphi d\varphi$ est la fonction partition qui ne dépend pas de φ .

A partir de l'équation 3.30 nous avons pu calculer la susceptibilité magnétique χ_H et la susceptibilité thermique χ_H de l'aimantation dans le cas ferromagnétique. Le résultat sera présenté dans le chapitre 6. Le calcul détaillé est présenté dans l'annexe B.

3.3 Transport électronique et thermique dans les métaux

3.3.1 Conductivité électrique et loi d'Ohm

La quantité de mouvement d'un électron libre est reliée au vecteur d'onde par $m\mathbf{v} = \hbar\mathbf{k}$. Lorsqu'un gradient de potentiel $\partial\mu/\partial z$ exist, le champ électrique est $\mathbf{E} = -(1/|e|)\partial\mu/\partial z$. La force exercée sur un électron de charge $-e$ est $\mathbf{F} = -e\mathbf{E}$, de sorte que la seconde loi de Newton s'écrit :

$$F = m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \hbar \frac{d\mathbf{k}}{dt} = -e\mathbf{E} \quad (3.31)$$

En l'absence de collisions, la sphère de Fermi de l'espace \mathbf{k} est déplacée à vitesse constante sous l'effet d'un champ électrique constant. En intégrant, on obtient :

$$\delta\mathbf{k} = -e\mathbf{E}t/\hbar \quad (3.32)$$

A cause des collisions des électrons avec les impuretés, les défauts du réseau et les phonons, la sphère déplacée peut être maintenue stationnaire dans un champ électrique. Si la date de la collision et τ le déplacement de la sphère Fermi en régime continu est donné par l'équation 3.32. L'incrément de vitesse ² est $\mathbf{v} = -e\mathbf{E}\tau/m$. S'il y a, dans un champ électrique \mathbf{E} , n électrons de charge $q = -e$ par unité de volume, la densité de courant électrique est [81] :

² \mathbf{v} est ici la vitesse électronique moyenne, aussi appelée vitesse d'entraînement.

$$J_e = nq\mathbf{v} = (ne^2\tau/m)\mathbf{E} = \sigma\mathbf{E} = -\frac{\sigma}{|e|}\frac{\partial\mu}{\partial z} \quad (3.33)$$

Ceci est la loi d'Ohm où la conductivité électrique σ est défini par :

$$\sigma = ne^2\tau/m \quad (3.34)$$

3.3.2 Conductivité thermique dans le métaux

Lorsqu'un gradient de température $\partial T/\partial z$ est présent, le flux de chaleur est défini par la loi de Fourier :

$$J_Q = -\kappa\frac{\partial T}{\partial z} \quad (3.35)$$

où : κ est le coefficient de conductivité thermique, J_Q est le flux d'énergie thermique, c'est-à-dire l'énergie transmise, à travers une section unité, par unité de temps.

L'équation de conservation $\partial T/\partial t = -\text{div}J_Q + P_Q^{\text{ext}}$ conduit à l'équation de Fourier du régime thermique. P_Q^{ext} est la puissance $R \cdot I^2$ fournie par le chauffage moins les termes de fuites de chaleur par les extrémités du fil et par les bords. L'étude des régimes thermiques a été effectuée sur les nanofils de Ni, et est reportée dans la référence [39].

La forme de l'équation qui définit la conductivité implique que le processus de transfert de l'énergie thermique est un phénomène statistique. L'énergie n'entre pas simplement par un bout de l'échantillon pour se rendre en ligne droite à l'autre bout ; au contraire, elle diffuse à travers l'échantillon, en subissant de fréquentes collisions. Si l'énergie était propagée directement sans déviation dans l'échantillon, l'expression du flux thermique ne dépendrait pas du gradient de température, mais seulement de la différence de température ΔT entre les extrémités de l'échantillon, indépendamment de la longueur de l'échantillon.

Dans les métaux, en utilisant le modèle du gaz d'électrons, on obtient le coefficient de conductivité thermique [81] :

$$\kappa = \frac{\pi^2 nk_B^2 T \tau}{3m} \quad (3.36)$$

où : n est la concentration en électrons et τ est le temps de collision.

3.3.3 Rapport des conductivités thermique et électrique

Pour les métaux à des température pas trop basse (par rapport à la température de Debye), la loi de Wiedemann-Franz indique que le rapport de

la conductivité thermique à la conductivité électrique est proportionnel à la température T de l'échantillon. La valeur de la constante de proportionnalité ne dépend pas de la nature du métal considéré.

En utilisant l'équation 3.34 pour σ et l'équation 3.36 pour κ , on obtient :

$$\frac{\kappa}{\sigma} = \frac{\pi^2 n k_B^2 T \tau / 3m}{n e^2 \tau / m} = \frac{\pi^2}{2} \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 T = \mathcal{L}_0 T \quad (3.37)$$

où : le nombre de Lorentz \mathcal{L}_0 est défini par :

$$\mathcal{L}_0 = \frac{\pi^2}{2} \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 = 2.45 \times 10^{-8} W.\Omega.K^{-2} \quad (3.38)$$

Ce résultat remarquable ne fait intervenir ni n , ni m et explique que ce rapport ne dépend que de la température T .

Il faut remarquer que cette relation est valable dans le cadre de ce travail car les mesures sont effectuées à une température autour de celle de l'ambiante.

3.3.4 Equations d'Onsager

Le fil est soumis à un gradient de potentiel ou un gradient de température. Le courant électrique et le courant thermique sont liés aux forces correspondantes respectivement par la loi d'Ohm et la loi de Fourier :

$$\begin{cases} J_e = -\frac{\sigma}{|e|} \frac{\partial \mu}{\partial z} \\ J_Q = -\kappa \frac{\partial T}{\partial z} \end{cases}$$

où μ - le potentiel électrochimique ; J_e - la densité de courant électrique ; J_Q - la densité de courant thermique ; σ - conductivité électrique ; κ - coefficient de Fourier

Dans les métaux, les porteurs de charge sont aussi les porteurs de chaleur, donc ces deux phénomènes sont couplés entre eux (Fig 3.5). Ce couplage est décrit par les coefficients croisés d'Onsager : coefficient Seebeck S (et le coefficient Peltier $\Pi = TS$). Reliant les flux aux forces, les équations d'Onsager macroscopiques sont écrites de façon suivante :

$$\begin{cases} J_e = -\frac{\sigma}{|e|} \frac{\partial \mu}{\partial z} + S\sigma \frac{\partial T}{\partial z} \\ J_Q = \frac{ST\sigma}{|e|} \frac{\partial \mu}{\partial z} - (\kappa + TS^2\sigma) \frac{\partial T}{\partial z} \end{cases} \quad (3.39)$$

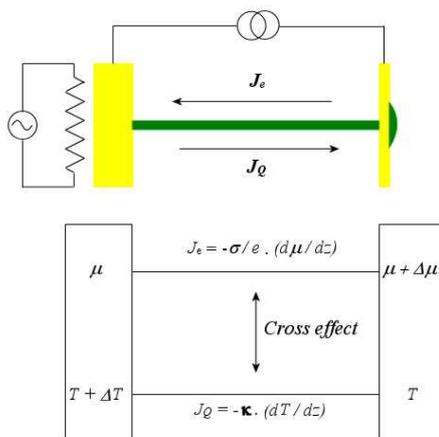


FIG. 3.5 – Effet croisé lorsque un gradient de potentiel et un gradient de température sont présents simultanément.

Dans notre configuration expérimentale, nous utilisons une source de courant (mode galvano-statique) : $J_e = \text{const.}$ Donc, il est plus commode de réécrire les équation d’Onsager de façon suivante :

$$\begin{cases} J_e = -\frac{\sigma}{|e|} \frac{\partial \mu}{\partial z} + S\sigma \frac{\partial T}{\partial z} \\ J_Q = -STJ_e - \kappa \frac{\partial T}{\partial z} \end{cases} \quad (3.40)$$

3.3.5 Effet Seebeck

L’effet Seebeck est un *effet thermoélectrique*, découvert par le physicien allemand Thomas Johann Seebeck en 1821. Il s’agit de l’apparition d’une différence de potentiel à la jonction de deux matériaux (A et B) soumis à une différence de température (T_1 et T_2).

Le pouvoir thermoélectrique est écrit de façon suivante :

$$V = - \int_{T_1}^{T_2} (S_A - S_B) dT \quad (3.41)$$

où : S_A et S_B est le coefficient de Seebeck, également appelés pouvoir thermoélectrique, du matériau (A ou B) qui exprime la relation linéaire entre le champ électrique généré et le gradient de température.

$$-\vec{\nabla}V = S\vec{\nabla}T \quad (3.42)$$

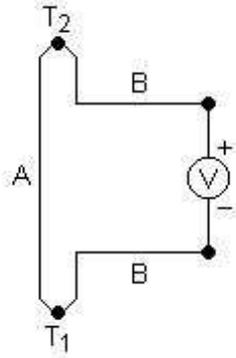


FIG. 3.6 – Circuit thermoélectrique de base.

Matériau	Ni	Au	Co	Cu
S ($\mu V \cdot K^{-1}$)	-8.5	0.82	-8.43	1.19

TAB. 3.1 – Coefficient Seebeck de quelques métaux à $300K$

L'origine physique du pouvoir thermoélectrique peut être obtenue dans le cadre des équations thermoélectriques irréversibles. D'après ces équations, le pouvoir thermoélectrique est interprété comme l'entropie transportée par chaque électron qui participe au courant électrique.

Pour une petite variation de température, c'est-à-dire quand $\Delta T = T_2 - T_1 \rightarrow 0$ devient très petite, on peut considérer que $S(T)$ est constante. On définit le pouvoir thermoélectrique du thermocouple $S \equiv S_A - S_B$, on peut réécrire l'équation 3.41 :

$$V = -S\Delta T \quad (3.43)$$

Le coefficient Seebeck s'exprime en $V \cdot K^{-1}$ ou plus généralement en $\mu V \cdot K^{-1}$ au vu des valeurs de ce coefficient dans les matériaux usuels 3.1.

3.4 Thermodynamique hors-équilibre

3.4.1 Résistance hors-équilibre

Dans le cadre du modèle à deux canaux généralisé à des variables internes quelconques α et γ , et qui inclut la relaxation d'un canal à l'autre, il est possible de montrer, basé sur la variation d'entropie [86], que le transport est

décrite par les équations d'Onsager suivantes :

$$\begin{aligned} J_\alpha &= -\frac{\sigma_\alpha}{e} \frac{\partial \mu_\alpha}{\partial z} \\ J_\gamma &= -\frac{\sigma_\gamma}{e} \frac{\partial \mu_\gamma}{\partial z} \\ \dot{\Psi}_{\alpha\gamma} &= L(\mu_\alpha - \mu_\gamma) \end{aligned} \quad (3.44)$$

où $\dot{\Psi}_{\alpha\gamma}$ décrit la relaxation entre les canaux α et γ en termes de vitesse de réaction $\alpha \rightarrow \gamma$. Le coefficient d'Onsager L est inversement proportionnel à temps de relaxation $\tau_{\alpha \rightarrow \gamma}$:

$$L \propto \left(\frac{f}{\tau_{\alpha \rightarrow \gamma}} + \frac{g}{\tau_{\gamma \rightarrow \alpha}} \right), \quad (3.45)$$

où f et g représente la distribution de charge électrique entre les deux canaux et ses valeurs sont près de l'unité. La configuration hors-équilibre est quantifié par la différence potentiel chimique $\Delta\mu = \mu_\alpha - \mu_\gamma$ de la réaction $\alpha \rightarrow \gamma$. La présence d'une interface suffit à mettre le système hors équilibre.

Dans le régime stationnaire, la loi de conservation de nombre de particule nous donnent :

$$\begin{aligned} \frac{dn_\alpha}{dt} &= -\frac{\partial J_\alpha}{\partial z} - \dot{\Psi}_{\alpha\gamma} = 0 \\ \frac{dn_\gamma}{dt} &= -\frac{\partial J_\gamma}{\partial z} + \dot{\Psi}_{\alpha\gamma} = 0 \end{aligned} \quad (3.46)$$

où n_α, n_γ sont les densités de particules de chaque canal.

Le courant total est constant :

$$J_t = J_\alpha + J_\gamma = -\frac{1}{e} \frac{\partial}{\partial z} (\sigma_\alpha \mu_\alpha + \sigma_\gamma \mu_\gamma) \quad (3.47)$$

Nous pouvons retrouver l'expression de la loi d'Ohm, $J_t = \sigma_t \partial \Phi / \partial z$, en introduisant le potentiel électrique mesurée Φ et la conductivité totale $\sigma_t = \sigma_\alpha + \sigma_\gamma$. Dans ces calculs, les paramètres $\sigma_{\alpha,\gamma}, \beta$ et L sont considérés comme constante dans l'espace. :

$$e\Phi = \frac{1}{\sigma_t} (\sigma_\alpha \mu_\alpha + \sigma_\gamma \mu_\gamma) \quad (3.48)$$

Supposons que les deux canaux se fondent en un canal de conduction unique pour une configuration spécifique, la référence, où il y a un équilibre local : $\Delta\mu_{eq} = 0$. La contribution hors-équilibre à la résistance, R^{ne} , est calculée par la relation suivante :

$$J_t e R^{ne} = \int_A^B \frac{\partial}{\partial z} [\mu_\alpha - e\Phi(z)] dz = \int_A^B \frac{\partial}{\partial z} [\mu_\gamma - e\Phi(z)] dz \quad (3.49)$$

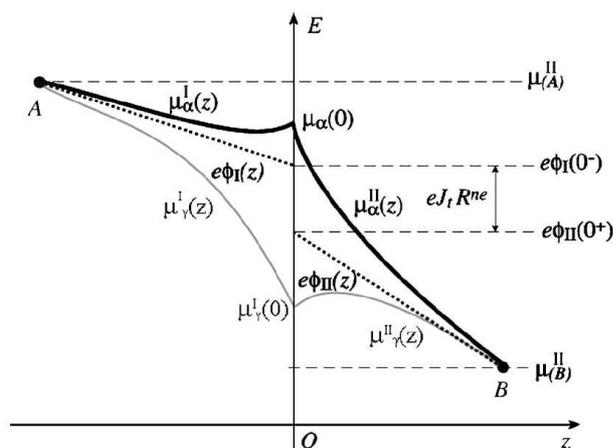


FIG. 3.7 – Profil de potentiel chimique dans l'intervalle $[A, B]$ pour les canaux α et γ . Au point A et B , on a $\mu_\alpha(A) = \mu_\gamma(A)$ et $\mu_\alpha(B) = \mu_\gamma(B)$. Les deux lignes droites représentent la variation dans chaque région (Φ_I, Φ_{II}). On voit bien que la résistance hors-équilibre R^{ne} est déterminée par la discontinuité de Φ à l'interface

donc

$$R^{ne} = -\frac{1}{J_t e} \int_A^B \frac{\sigma_\alpha - \sigma_\gamma}{2\sigma_t} \frac{\partial \Delta\mu}{\partial z} dz \quad (3.50)$$

où les points de mesure A et B sont localisés suffisamment loin de l'interface (dans le matériau massif) tel que $\Delta\mu(A) = \Delta\mu(B) = 0$ (voir Fig. 3.7). L'intégrale dans l'équation 3.49 est calculée seulement sur la partie régulière de la fonction (Φ et $\sigma_{\alpha,\gamma}$ sont discontinues)³. Equation 3.50 nous permet de calculer facilement la résistance hors-équilibre à une jonction simple entre deux couches (composée par les couches I et II).

Si nous fixons la jonction à position $z = 0$ et les conductivités sont σ_i^I et

³L'intégral de Riemann est évaluée dans l'intervalle où la dérivée est régulière. Il faut noter que le calcul global sur l'intervalle $[A, B]$ dans le cadre de la théorie de distribution donne zéro car $\Delta\mu(A) = \Delta\mu(B) = 0$. Ceci veut dire simplement que l'intégrale de la partie régulière est opposée à l'intégrale de la fonction de Dirac à l'interface. La résistance hors-équilibre est liée à la chute de potentiel chimique entre le point A et B . On obtient donc : $J_t e R^{ne} = [\mu_I(A) - \mu_{II}(B)] - e[\Phi_I(A) - \Phi_I(0^-)] - e[\Phi_{II}(0^+) - \Phi_{II}(B)] = [\mu_I(A) - e\Phi_I(A)] - [\mu_0 - e\Phi_I(0^-)] + [\mu_0 - e\Phi_{II}(0^+)] - [\mu_{II}(B) - e\Phi_{II}(B)] = e[\Phi_I(0^-) - \Phi_{II}(0^+)]$. Il est évident que la deuxième expression de $J_t e R^{ne}$ au-dessus est simplement l'opposée à celle de l'équation 3.49 et égale à la discontinuité de Φ à l'interface. L'interprétation physique est montrée sur la figure 3.7

σ_i^{II} ($i = \{\alpha, \gamma\}$), on a :

$$J_t e R^{ne} = \int_A^0 \frac{\sigma_\alpha^I - \sigma_\gamma^I}{2\sigma_t} \frac{\partial \Delta\mu^I}{\partial z} dz + \int_0^B \frac{\sigma_\alpha^{II} - \sigma_\gamma^{II}}{2\sigma_t} \frac{\partial \Delta\mu^{II}}{\partial z} dz \quad (3.51)$$

Dans le matériau massif, on retrouve l'équilibre, donc :

$$R^{ne} = \left(\frac{\sigma_\alpha^I - \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II} - \sigma_\gamma^{II}}{\sigma_t^{II}} \right) \frac{\Delta\mu(0)}{2J_t e} \quad (3.52)$$

La différence de potentiel chimique $\Delta\mu(z)$, qui représente la force de pompage opposée à la relaxation $\alpha \rightarrow \gamma$, est obtenue en résolvant l'équation de diffusion déduite à partir des équations 3.44 et 3.46 [10, 8, 87, 9, 88, 86] :

$$\frac{\partial^2 \Delta\mu(z)}{\partial z^2} = \frac{\Delta\mu(z)}{l_{diff}^2} \quad (3.53)$$

où :

$$l_{diff}^{-2} = eL(\sigma_\alpha^{-1} + \sigma_\gamma^{-1}) \quad (3.54)$$

est la longueur de diffusion reliée à la relaxation $\alpha \rightarrow \gamma$.

À l'interface ($z = 0$), la continuité du courant pour chaque canal est donc : $J_\alpha^I(O) = J_\alpha^{II}(O)$, où :

$$J_\alpha(0) = -\frac{\sigma_\alpha \sigma_\gamma}{e\sigma_t} \frac{\partial \Delta\mu}{\partial z} + \frac{\sigma_\alpha}{\sigma_t} J_t \quad (3.55)$$

qui mène à la relation générale :

$$\Delta\mu(0) = \left(\frac{\sigma_\alpha^I}{\sigma_t^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II}}{\sigma_t^{II}} \right) \left(\frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I l_{diff}^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II} \sigma_\gamma^{II}}{\sigma_t^{II} l_{diff}^{II}} \right) e J_t \quad (3.56)$$

Insérée l'équation 3.56 dans l'équation 3.52, nous obtenons l'expression générale pour la résistance hors-équilibre (par l'unité de surface) produite par le mécanisme de relaxation $\alpha \rightarrow \gamma$ à la jonction :

$$R^{ne} = \left(\frac{\sigma_\alpha^I - \sigma_\gamma^I}{2\sigma_t^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II} - \sigma_\gamma^{II}}{2\sigma_t^{II}} \right) \left(\frac{\sigma_\alpha^I}{\sigma_t^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II}}{\sigma_t^{II}} \right) \times \left(\sqrt{\frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I L^I}{\sigma_t^I}} + \sqrt{\frac{\sigma_\alpha^{II} \sigma_\gamma^{II} L^{II}}{\sigma_t^{II}}} \right)^{-1} \quad (3.57)$$

Il est plus pratique de décrire la conductivité asymétrique par un paramètre β tel que $\sigma_\alpha = \sigma_t(1+\beta)/2$ et $\sigma_\gamma = \sigma_t(1-\beta)/2$. La contribution hors-équilibre à la résistance prend donc la forme suivante :

$$R^{ne} = \frac{1}{2} \frac{(\beta_I - \beta_{II})^2}{\sqrt{eL^I \sigma_t^I (1 - \beta_I)^2} + \sqrt{eL^{II} \sigma_t^{II} (1 - \beta_{II}^2)}} \quad (3.58)$$

où nous avons utilisé la relation :

$$l_{diff}^{-1} = 2 \sqrt{\frac{eL}{\sigma_t(1 - \beta^2)}} \quad (3.59)$$

3.4.2 Le cas de la GMR et de l'AMR d'interface

3.4.3 Magnétorésistance géante

L'exemple le plus connu de la résistance hors-équilibre à l'interface décrite dans la section précédente est la magnétorésistance géante [12, 13] qui se produit près d'une jonction composée de deux couches ferromagnétique F_1/F_2 d'un même matériau. Les populations électroniques sont de porteurs polarisées en spin quantifiés le long du paramètre d'ordre ferromagnétique $\alpha = \uparrow, \gamma = \downarrow$. La longueur de diffusion est la longueur de diffusion de spin $l_{diff} = l_{sf}$. La relaxation $\alpha \rightarrow \gamma$ est la relaxation *spin-flip* et a tendance à compenser la déviation de l'équilibre local. Ce processus mène à une accumulation de spin décrite par la force généralisée $\Delta\mu = \mu_\uparrow - \mu_\downarrow$. L'équilibre local ($\Delta\mu = 0$) est retrouvé dans le corps ferromagnétique au niveau des sondes de tension d'or, également, dans le cas des configurations de deux couches magnétiques parallèles. Lorsque les aimantations des deux couches sont parallèles, nous avons effectivement que $\sigma_\uparrow^I = \sigma_\uparrow^{II}$ et $\sigma_\downarrow^I = \sigma_\downarrow^{II}$, et donc $R^{ne} = 0$. Cependant, dans une configuration antiparallèle $\sigma_\uparrow^I = \sigma_\downarrow^{II}$ et $\sigma_\downarrow^I = \sigma_\uparrow^{II}$. En termes de la conductivité asymétrie β_s , nous avons $\sigma_\uparrow = \sigma_t(1 + \beta_s)/2$ et $\sigma_\downarrow = \sigma_t(1 - \beta_s)/2$ (l'indice s désigne le type s - peut-être *sd*-hybridé - de la bande de conduction). La résistance hors-équilibre est écrite de façon suivante :

$$R_{GMR}^{\uparrow\downarrow} = \frac{\beta_s^2}{\sigma_t(1 - \beta_s^2)} l_{sf} = \frac{\beta_s^2}{\sqrt{eL\sigma_t(1 - \beta_s^2)}} \quad (3.60)$$

Cette expression est la magnétorésistance géante bien connue mesurée dans des dispositifs $F_1/N/F_2$. Elle est souvent présentée sous la forme normalisée :

$$\frac{R_{GMR}^{\uparrow\downarrow}}{R_0} = \frac{\beta_s^2}{(1 - \beta_s^2)} \frac{l_{sf}}{\Lambda} \quad (3.61)$$

mesurée sur une couche de l'épaisseur Λ , où $R_0 = R^{\uparrow\uparrow} = R^{\downarrow\downarrow} = \Lambda/\sigma_t$ est la résistance d'ensemble des couches (par unité de surface).

Dans le cas d'une seule jonction N/F , on a $\sigma_\alpha^I = \sigma_\gamma^I$ dans le métal normal et $\sigma_\alpha^I \neq \sigma_\gamma^I$ dans le métal ferromagnétique. La résistance hors-équilibre est donc :

$$R_{GMR}^{N-F} = \frac{1}{2} \frac{\beta_s^2}{\sqrt{eL^N \sigma_t^N} + \sqrt{eL^F \sigma_t^F (1 - \beta_s^2)}} \quad (3.62)$$

C'est la résistance hors-équilibre qui s'est produite par une seule couche magnétique. Il faut remarquer que, malgré l'existence de l'accumulation de spin et la résistance hors-équilibre non nulle, il est impossible de mesurer la différence de R_{GMR}^{N-F} par rapport à un état de référence car cette résistance ne varie pas avec les configurations magnétiques ou avec aucun paramètre extérieur (sauf dans le cas où il y a des parois de domaine [89]). Autrement dit, R_{GMR}^{N-F} est présentée mais il n'y a pas de moyen de le détecter. Quoique les résultats de GMR soient bien connus, l'équation 3.57 qui est plus générale, nous permet d'élargir la discussion sur la résistance hors-équilibre au-delà de l'effet GMR.

3.4.4 Magnétorésistance d'interface

A partir de notre approche généralisée, il est possible de prédire l'existence d'une magnétorésistance anisotropie hors-équilibre (NeAMR) due à l'interface. La magnétorésistance anisotropie (AMR) est caractérisée par une conductivité $\sigma_t(\varphi)$ qui dépend de l'angle $\varphi = (\vec{I}, \vec{M})$ entre la *direction du courant* et l'*aimantation*. Dans des structures mono-domaine, l'angle φ ajuste avec le champ magnétique appliqué qui modifie la direction de l'aimantation. Au contraire de la GMR ($\uparrow\downarrow$ relaxation), l'AMR est un effet du matériau massif donc nécessairement associé avec au moins un canal de relaxation anisotropique $\alpha \rightarrow \gamma(\varphi)$ qui est contrôlé par la direction de l'aimantation (et donc relié au couplage *spin-orbite* [14]). Même si généré par des relaxations électroniques dépendantes du spin, le canal de relaxation $\alpha \rightarrow \gamma(\varphi)$ n'est pas nécessairement lié avec le *spin-flip*. Généralement, nous supposons que la *relaxation du canal minoritaire s isotropique* $\alpha = s \downarrow$ *aux canaux minoritaires d anisotropique* $\gamma = d \downarrow$ *est la contribution principale* ⁴ *à l'AMR dans les matériaux magnétique 3d* [90, 91, 14, 92]. Dans un *métal normal* où il n'y a pas d'effet de la bande de conduction d, la conductivité du canal (minori-

⁴Il est claire que le modèle devrait prendre en compte les quatre canaux, deux canaux de spin pour chaque bande s et d [92]. Pour la simplicité, on limite la discussion ici au modèle de deux canaux indépendants, avec deux canaux polarisés en spin d'un côté et deux canaux de conduction s et d de l'autre.

taire) d s'annule, donc que $\beta_{sd}^N = 1$. La magnéto-résistance hors-équilibre est une fonction de $\varphi(\vec{M})$ définie par :

$$R_{AMR}^{N-F}(\varphi) = \frac{1}{2} \frac{[1 - \beta_{sd}(\varphi)]^2}{\sqrt{eL_{sd}\sigma_t(\varphi)[1 - \beta_{sd}^2(\varphi)]}} \quad (3.63)$$

où $\beta_{sd}(\varphi)$ est la conductivité asymétrie correspond aux canaux de relaxation de l'AMR ; $\sigma_\alpha(\varphi) = \sigma_t(\varphi)[1 + \beta_{sd}(\varphi)]/2$ et $\sigma_\gamma(\varphi) = \sigma_t(\varphi)[1 - \beta_{sd}(\varphi)]/2$ dans le matériau magnétique. En termes de la longueur de diffusion et normalisée à l'AMR du matériau massif $R_0(\varphi)$, la NeAMR est écrite :

$$\frac{R_{AMR}^{N-F}(\varphi)}{R_0(\varphi)} = \left(\frac{1 - \beta_{sd}(\varphi)}{1 + \beta_{sd}(\varphi)} \right) \frac{l_{diff}(\varphi)}{\Lambda} \quad (3.64)$$

où Λ est l'épaisseur de la couche.

Pourtant, la contribution de $R_{AMR}^{N-F}(\varphi)$ est difficile à mesurer car l_{diff} est petite (nanométrique voire au-dessous) et la contribution directe de l'AMR du massif domine dans les configurations habituelles (voir [93, 94] pour une contribution possible dans des dispositifs $F_1/N/F_2$).

Chapitre 4

Protocoles de mesure

Nous avons développé un dispositif expérimental capable de mesurer la dépendance en champ magnétique des différentes propriétés physiques des nanofils :

1. **Mesure de la magnéto-résistance**
2. **Mesure du pouvoir thermoélectrique dépendant du spin**
3. **Mesure de la susceptibilité thermique de la magnéto-résistance**

Comme les échantillons sont extrêmement fragiles, ces mesures sont effectuées sur un même porte-échantillon (les schémas de ces mesures sont présentés sur la figure 4.1) afin d'éviter toutes manipulations sur l'échantillon (voir chapitre 2 pour plus de détails).

4.1 Dispositif expérimental

Le dispositif est schématiquement présenté sur la figure 4.2. Le porte-échantillon est placé dans une petite cage de Faraday qui permet de réduire significativement les bruits électromagnétiques générés par différentes sources dans le laboratoire. Il est placé ensuite dans l'espace entre deux bobines d'électroaimants alimentés par un générateur qui peut générer un courant d'intensité variable jusqu'à $80A$. La valeur du champ magnétique appliqué sur l'échantillon dépend donc l'intensité de courant passée dans les bobines. Le champ magnétique créé peut atteindre $\mu_0 H \simeq 2.3T$ lorsque le courant à $80A$, donc la conversion est de $\simeq 29mT/A$. Cette intensité est contrôlée par un signal analogue (en tension) généré par une source de tension YOKOGAWA 7651 (voir Fig. 4.2).

La polarité du champ est définie par le signe du signal analogue. Dans la première partie de ce travail (chapitre 5 - Propriétés thermoélectriques

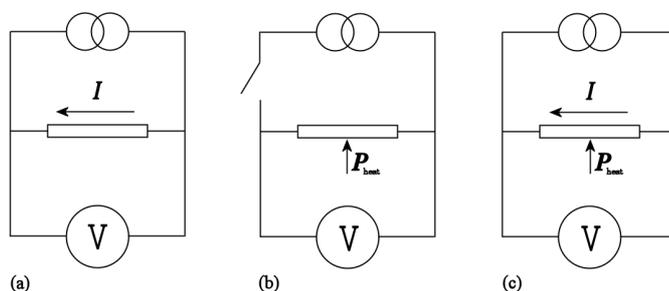


FIG. 4.1 – Mesures effectuées avec le même support. Le schéma du circuit électrique correspondant pour chaque mesure : a) Mesure de la magnétorésistance b) Mesure du pouvoir thermoélectrique dépendant du spin c) Mesure de la susceptibilité thermique de la magnétorésistance

dépendant du spin), nous avons utilisé une alimentation unipolaire, donc la direction du champ est fixée dans un sens unique. En conséquence, nous ne pouvons mesurer que la moitié du cycle d'hystérésis pour un angle donné. L'autre partie du cycle est mesurée en tournant l'échantillon de 180° . Dans la deuxième partie du travail (chapitre 6 - Susceptibilité thermique de la magnétorésistance), nous avons remplacé l'alimentation unipolaire par une alimentation bipolaire afin de balayer tout le cycle d'hystérésis. Cette remarque pour justifier le profil des graphiques qui ne montrent que les champs magnétiques positifs.

Lorsque nous envoyons un signal maximum de $10V$, le courant passe dans les bobines est de $80A$, qui génère un champ magnétique de $\simeq 2.3T$ ($\simeq 23kG$). Le champ magnétique est mesuré par une sonde d'effet Hall collée sur la surface de l'électroaimant (qui est précalibrée avec un gaussmètre). La valeur du champ est déduite à partir de la résistance Hall de la sonde R_H mesurée par un *multiplexeur Keithley K2000* qui permet de mesurer la résistance Hall de la sonde par une mesure 4 points. Normalement, nous utilisons un champ maximal de l'ordre de $\sim 1.2T$ car dans le cas particulier des nanofils de nickel, le champ saturant (la valeur du champ magnétique extérieur à partir de laquelle la direction de l'aimantation du nanofil s'oriente avec celle du champ) est seulement de l'ordre de $0.3T$.

Les bobines et l'alimentation sont refroidies par un circuit d'eau dont le débit doit atteindre au moins $12l/mn$ afin de ne pas surchauffer le système. Comme nous avons utilisé un seul circuit d'eau afin d'en économiser, il est impératif de brancher le circuit de refroidissement de l'alimentation en série avec celui des bobines pour assurer que l'eau circule bien dans le système, i.e. l'alimentation et les bobines. Comme l'aimantation est plus sensible à la

température que la bobine, donc il est préférable de faire passer l'eau (moins chaude) dans l'alimentation puis dans la bobine (l'eau sera plus chaude). L'utilisation de l'eau glacée est strictement interdite car ça peut condenser la vapeur d'eau dans l'air et endommager le système électrique. Un contrôle de la circulation d'eau est effectué avant toutes les mesures.

Afin d'augmenter la précision, la mesure de résistance est effectuée en quatre points à partir de la surface de la membrane (mais le nanofil lui-même est mesuré en deux points de part et d'autre de la membrane). Il s'agit de faire passer dans le circuit un courant de l'ordre de $10\mu A$ d'intensité par un *Keithley 224 Programmable DC Current Source* avec une précision $\pm(0.05\%v.a.) + 100nA$ *offset* pour le calibre $100\mu A$ de courant (v.a. = valeur affichée). La chute de tension entre les deux extrémités du nanofil est mesurée par un nanovoltmètre *Keithley 182 Sensitive Digital Voltmeter* avec un bruit intrinsèque $\pm 20nV$ pour une résistance de source de $1k\Omega$.

Pour éviter l'influence des bruits électromagnétiques, nous avons utilisé : les câbles tri-axiaux avec la couche de protection connectée à la masse ; des prises BNC double placées dans une boîte métallique pour protéger des connections électriques ; une cage de Faraday pour protéger l'échantillon. En ayant pris toutes ces précautions, le bruit blanc est réduit à $\pm 40nV$ qui est suffisant pour nos mesures.

Tous les appareils sont pilotés par ordinateur via l'interface GPIB (*General Purpose Interface Bus*). Les programmes pour contrôler les instruments, acquérir des données, automatiser les mesures sont faites avec LabVIEW (*Laboratory Virtual Instrumentation Engineering Workbench*), un langage graphique de programmation de *National Instruments*. Les faces avant des programmes de mesure seront montrées dans la suite.

Les données sont enregistrées sous forme de textes et les éléments sont séparés par un *Tab*. Elles sont répertoriées comme suivant :

1. Toutes les données sont enregistrées dans le répertoire *Data*
2. Puis par un dossier pour chaque mois (sous format mm-aaaa)
3. Les données pour chaque échantillon sont stockées dans un dossier avec le même nom de l'échantillon
4. Puis diviser par le nom du VI utilisé pour chaque mesure
5. En suite, classer par le jour où la mesure est faite (sous format jj-mm-aa).

Cette structure est créée automatiquement lorsque nous faisons des mesures pour caractériser l'échantillon.

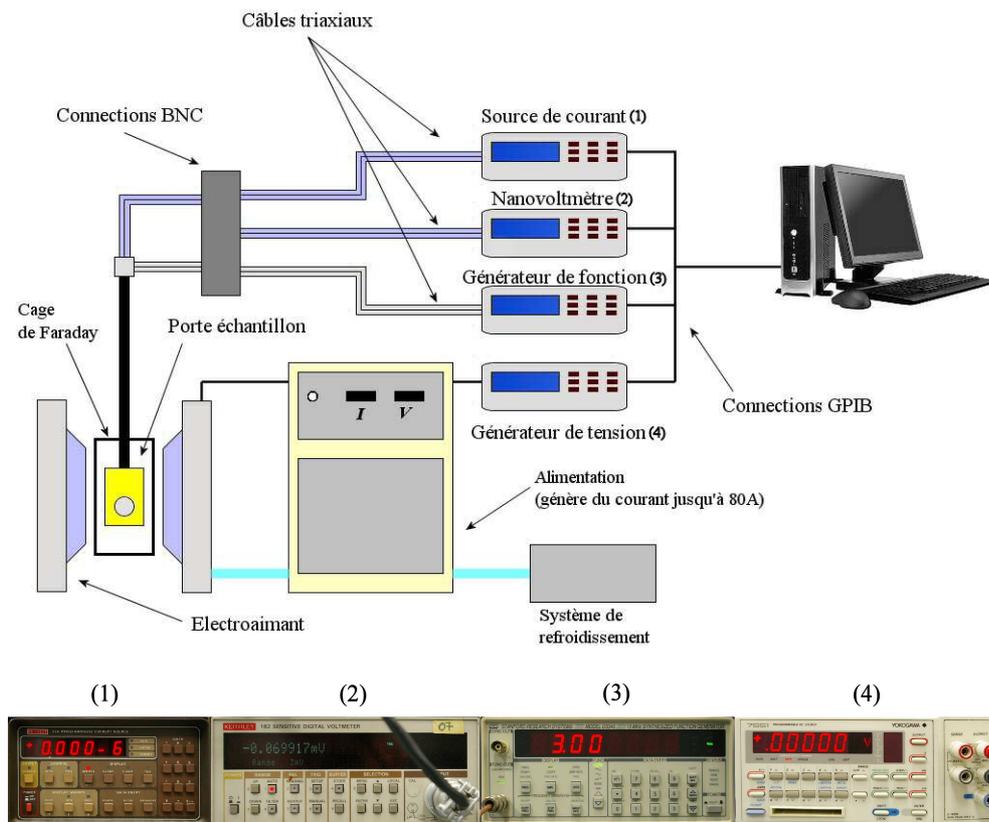


FIG. 4.2 – Schéma du dispositif de mesure. La sonde d'effet Hall et le multiplexeur ne sont pas présentés ici afin de ne pas compliquer le schéma. (1) - Keithley 224 Programmable Current Source ; (2) - Keithley 182 Sensitive Digital Voltmeter ; (3) - SRS DS340 15MHz Synthesized function generator ; (4) - YOKOGAWA 7651 Programmable DC Source.

4.2 Protocole de mesure de la magnétorésistance

Grâce à un grand nombre d'études ultérieures sur les propriétés de magnétorésistances des nanofils, nous avons déjà une bonne connaissance sur les profils typiques des hystérésis de magnétorésistance d'un nanofil ainsi que des états d'aimantation correspondant. Dans le cadre de ce travail, la mesure de MR sert seulement à caractériser magnétiquement nos échantillons et non pour étudier l'AMR des nanofils de nickel. Lors d'une première approche de caractérisation, les mesures de magnétorésistances sont utilisées comme sonde pour déterminer les états d'aimantation.

La résistance est mesurée par un courant direct (DC) injecté dans le nanofil (Fig. 4.1.a), la différence de potentiel électrique est détectée par un digital-voltmètre (voir section 4.1). Comme le plus petit calibre de mesure du voltmètre est de $3mV$, le choix de l'intensité du courant injecté est fait de telle façon que la tension mesurée varie entre $1.5mV$ et $3mV$, afin d'augmenter le rapport signal-bruit. Typiquement, la résistance de nos échantillons est de l'ordre quelques centaines d'ohm, donc il sont mesuré avec un courant de l'ordre de $10\mu A$. Le rapport signal sur bruit est alors de l'ordre de $40nV/2mV \simeq 2 \cdot 10^{-5}$.

En inversant la polarité du courant pour chaque point de mesure et en faisant la moyenne, nous pouvons enlever l'offset généré par les tensions d'interface de l'ensemble du circuit et donc obtenir la valeur exacte de la résistance.

Afin de corriger autant que possible les *drifts* dans le temps, les mesures sont toujours effectuées en aller-retour, i.e. le dernier point est mesuré dans les mêmes conditions que le premier point, et les mesures sont effectuées plusieurs fois. S'il y a un *drift* linéaire, il suffit donc de faire coïncider ces deux points par une transformation linéaire pour l'éliminer. Ce *drift* est une variation lente de la résistance au cours du temps dont l'origine est multiple. Il est particulièrement intense au début de la vie de l'échantillon (dès qu'il sort du bain électrolytique), et lors de l'injection de courant fort. Nous retiendrons comme cause première du *drift* les phénomènes d'électromigration (y compris la fusion partielle de métal susceptible de détruire ou de créer un contact) et l'existence de régimes thermiques fluctuants impliquant l'ensemble du dispositif (refroidissement ou échauffement progressif des parties macroscopiques du circuit).

Normalement, il faut que l'échantillon se sèche pendant 3-4 heures après l'électrodéposition afin que sa résistance soit stable. Comme nous faisons une étude comparative, il est inutile de commencer les mesures avant de vérifier

que la résistance de l'échantillon soit stable.

4.2.1 Evaluation du contact électrique du nanofil

Dans notre étude, les dimensions du nanofil sont prédéfinies par la taille des nanopores de la membrane. Afin de calculer la résistance, il nous faut la résistivité du matériau. La dépendance de la résistivité en fonction de la température a été étudiée par Jaccard [108], Blondel [82] et Guittienne [39, 40] afin de caractériser le nickel, le cobalt et le cuivre électrodéposés. D'après la loi de Mathiessen, nous pouvons déduire la résistivité en mesurant la variation de la résistance en température, puis le comparer avec des valeurs bien connue pour les matériaux massifs [85]. La loi de Mathiessen dit que la résistivité d'un métal qui contient des impuretés ou des défauts à une température T est donnée par la relation suivante :

$$\rho_{tot}(T) = \rho_{ph}(T) + \rho_r \quad (4.1)$$

où : $\rho_{tot}(T)$ est la résistivité du métal mesuré, ρ_{ph} (le "ph" veut dire *phonon*) est la résistivité produite par les phonons (i.e. les vibrations du réseau), et ρ_r est la résistivité résiduelle associée aux impuretés et aux défauts de structures ; on suppose que ρ_{add} est indépendante de la température.

Nous pouvons donc calculer la résistance calculée du nanofil à partir de la résistivité :

$$R_0 = R - R_{contact} = \frac{\rho L}{\pi r^2} \quad (4.2)$$

où : R est la résistance mesurée pour chaque échantillon, $R_{contact}$ est la résistance de contact qui varie d'un échantillon à l'autre, R_0 est la résistance du nanofil dans le pore.

Les valeurs typiques de la résistance d'un seul nanofil de nickel, à température ambiante et à champ magnétique appliqué nul, sont mesurées dans la gamme de 80Ω à 200Ω . Nous obtenons donc une limite inférieure pour leur résistivité $\mu = 13\mu\Omega cm$. La valeur mesurée de la résistivité ρ est deux fois plus grande que la valeur publiée pour le matériau massif monocristalin (voir Tab. 4.1). Ceci vient d'une part de la résistance de contacte, et d'autre part du fait que le nickel électrodéposé a une structure poly-cristalline composé de très petits cristallites. Nous pouvons aussi nous attendre à un effet de confinement dans les nanofils de petit diamètre.

Comme l'AMR est une propriété intrinsèque du matériau, ainsi que la résistance du nanofil dans le pore, nous allons donc définir le ratio d'AMR de façon suivante :

$$AMR = \frac{R^{\parallel} - R^{\perp}}{R^{\perp}} \quad (4.3)$$

Mat.	$\rho_t[10^{-9}\Omega m]$	$\alpha_t[10^{-3}K^{-1}]$	$\rho_m[10^{-9}\Omega m]$	$\alpha_m[10^{-3}K^{-1}]$	AMR
Ni	68.4	6.9	130	6.3	2%
Co	62.4	6.04	200	1.07	1.9%
Cu	16.7	6.8	40	1.52	0%

TAB. 4.1 – Résistivité ρ et coefficient de température α pour nickel, cobalt et cuivre. (ρ_t, α_t sont des valeurs du matériau massif [83, 84]; ρ_m, α_m sont celles mesurées pour le nanofil électrodéposé [82]). L'AMR (du matériau massif) est retirée de la référence [14].

avec R^{\parallel} est la résistance mesuré lorsque l'aimantation est saturée parallèlement à l'axe du fil, et R^{\perp} est la résistance mesurée lorsque l'aimantation est saturée perpendiculairement à l'axe du fil.

Dans le meilleur des cas, $R_{contact}$ est zéro et donc :

$$AMR_0 = \frac{R_0^{\parallel} - R_0^{\perp}}{R_0^{\perp}} \quad (4.4)$$

Nous supposons que la résistance de contact ne dépend pas du champ magnétique extérieur. Nous avons donc $R = R_0 + R_{contact}$.

$$AMR = \frac{R_0^{\parallel} - R_0^{\perp}}{R_0^{\perp} + R_{contact}} \quad (4.5)$$

A partir de (4.4) et (4.5), on obtient :

$$R_{contact} = R_{\perp} \left(\frac{AMR_0}{AMR} - 1 \right) \quad (4.6)$$

Dans ce travail, le ratio AMR mesuré sur des bons échantillons varie entre 0.8% et 2% (voir Fig. 4.3). La distribution est assez large parce que, dans le cas d'un contact multiple, la résistance d'un mauvais contact peut être de même l'ordre que la résistance de l'ensemble des fils en parallèle. Nous prenons l' $AMR_0 = 2\%$ pour estimer la résistance de contact. Cette AMR correspond à la valeur donnée par McGuire et Potter [14].

En comparant (4.4) et (4.5), nous constatons que l' AMR est toujours plus petite que l' AMR_0 car la résistance du contact doit être supérieure ou égale à zéro. Plus la résistance de contact est petite, l' $AMR_{mesuree}$ sera plus grande. Donc, le ratio d' $AMR_{mesuree}$ est un premier critère pour évaluer la qualité du contact électrique entre le nanofil et les couches d'or.

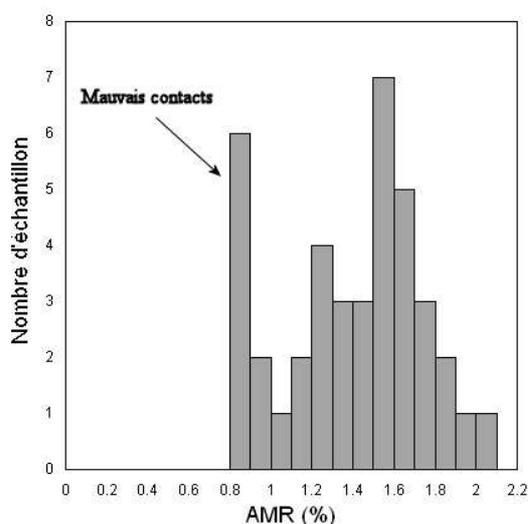


FIG. 4.3 – Statistique sur l'AMR des nanofils de Nickel électrodéposés.

4.2.2 Mesure de l'AMR en fonction de l'angle θ

Il s'agit de mesurer la dépendance de la résistance du nanofil en fonction de l'angle θ (voir la figure 3.1 au chapitre 3) entre l'axe du nanofil et la direction du champ magnétique appliqué \vec{H} . Le champ est fixé à une valeur suffisamment grande afin de s'aligner l'aimantation \vec{M} le long du champ magnétique \vec{H} (i.e. $\varphi = \theta$, où φ est l'angle entre l'aimantation et l'axe du nanofil) à une valeur de θ quelconque.

Nous faisons varier l'angle θ de $-90deg$ à $90deg$ puis revenir à $-90deg$ avec un pas de $15deg$. Il faut remarquer que ces valeurs sont nominales car le nanofil n'est pas toujours perpendiculaire avec la membrane (il y a une distribution de l'ordre $\pm 10deg$ de l'angle des pores par rapport à la normale de la surface de la membrane polycarbonate).

La figure 4.4 montre la face avant du programme que nous avons fait pour mesurer l'AMR en fonction de θ . Dans la case **Courant(A)**, il faut mettre la valeur du courant qu'on utilise pour la mesure. Comme nous avons mentionné dans la section précédente, il est de l'ordre d'une dizaine de μA . L'indicateur au-dessous doit être allumé (en vert) pour qu'on puisse lancer le programme. Comme les échantillons sont extrêmement fragiles, nous l'avons fait exprès pour éviter une mauvaise manipulation et pour vérifier la valeur du courant avant de faire fonctionner le programme. Chaque fois nous changeons l'angle θ , il faut noter la valeur correspondante dans la case **Angle**. La case **H(V)** indique l'amplitude du signal analogue que nous utilisons pour

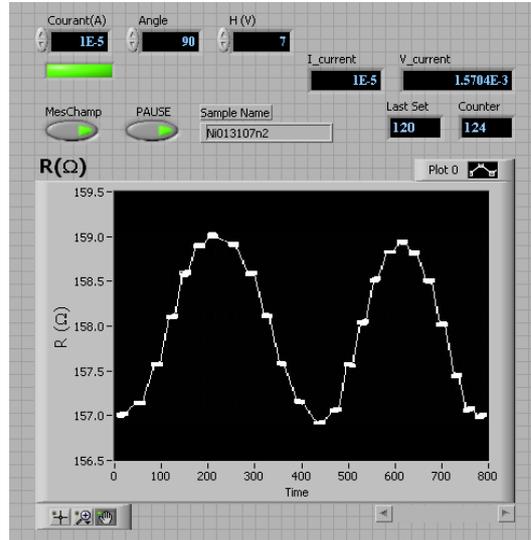


FIG. 4.4 – Face d’avant du programme utilisé pour la mesure AMR en fonction d’angle entre l’axe du nanofil et la direction du champ magnétique appliqué. (Nom du VI (VI = Virtual Instrument) : R(angle)atH.vi)

générer le champ (la valeur typique est de $5V$ à $7V$ pour créer un champ de $\sim 11.5kG$ à $\sim 15kG$). L’afficheur **I_current** et **V_current** montre le courant actuel et la tension actuelle de la mesure. Le bouton **MesChamp** est fait pour choisir de mesurer la vraie valeur du champ avec la sonde de Hall ou la valeur de consigne donnée au générateur. Comme nous n’avons pas une table rotative, la mesure en angle est effectuée manuellement. Pour chaque valeur de θ , nous prenons quelques points de mesure (3 à 5 points) afin d’obtenir expérimentalement la barre d’erreur. Le programme s’est mis en pause automatiquement pour qu’on change l’angle. Le bouton **PAUSE** s’allume pour indiquer que le programme est en pause et il faut cliquer dessus pour continuer. La fenêtre graphique montre la résistance au cours du temps.

Le schéma fonctionnel du programme pour mesurer l’AMR en fonction de l’angle θ est présenté sur la figure 4.5.

La figure 4.6 montre le profil d’AMR en fonction de l’angle θ . En ajustant avec l’équation $R = R_{\perp} + \Delta R \cos^2 \theta$ (voir Equ.3.29, on a $R_{\perp}, \Delta R, \theta$ comme paramètres ajustables).

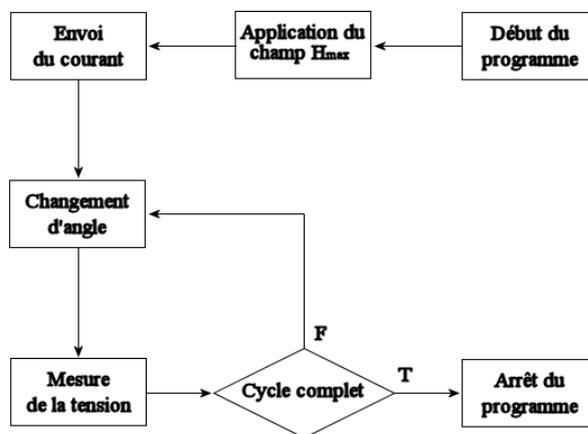


FIG. 4.5 – Schéma fonctionnel du VI fait pour mesurer l'AMR en fonction de l'angle θ : R(angle)atH.vi

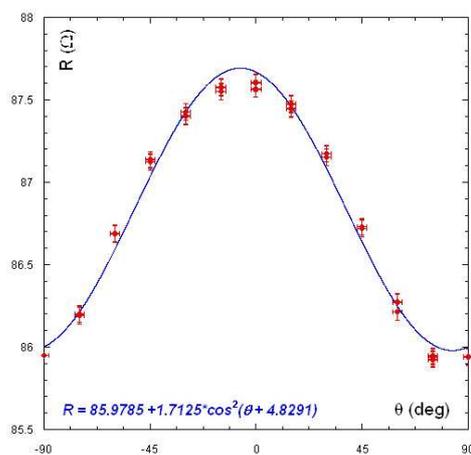


FIG. 4.6 – Profil d'AMR en fonction de l'angle θ . Les points en rouges sont des points expérimentaux. La courbe en bleu est la courbe d'ajustement dont l'équation est donnée ci-dessus.

4.2.3 Mesure de l'AMR en fonction du champ H

Cette fois-ci, il s'agit de fixer l'angle θ (Fig. 3.1), c'est à dire fixer l'échantillon à un angle nominal par rapport au champ magnétique \vec{H} , puis mesurer la résistance du nanofil en faisant varier l'intensité du champ.

Dans la première partie du travail (chapitre 5), l'alimentation unipolaire nous permet seulement varier le champ de 0 à H_{max} puis revenir à 0 (*half-loop*). Avant chaque mesure, l'aimantation du nanofil est saturée dans la direction opposée en effectuant les étapes suivantes :

1. tourner l'échantillon de $180deg$
2. augmenter l'intensité du champ jusqu'à H_{max}
3. remettre le champ à zéro
4. retourner l'échantillon vers la direction initiale

Dans la deuxième partie (chapitre 6), nous faisons varier le champ de $-H_{max}$ à H_{max} puis revenir à $-H_{max}$ (*full-loop*) à l'aide de l'alimentation bipolaire (plus besoin de saturer l'aimantation du nanofil avant chaque mesure).

La face avant du programme pour mesurer l'AMR en fonction du champ magnétique extérieur est montrée sur la figure 4.7. Afin de faire un *zoom* sur la partie où il y a le saut irréversible, l'intervalle entre $-H_{max}$ et $+H_{max}$ est divisée en trois zones donc les bords sont nommés **H1(V)**, **H2(V)**, **H3(V)**, **H4(V)**.

Le champ est balayé avec des incréments différents **Incr1(V)**, **Incr2(V)** et **Incr3(V)** dans chaque zone, donc plus petit dans la zone où nous faisons le *zoom*. Les valeurs typique sont aussi montrées sur la figure 4.7. Il n'est pas obligatoire que cela soit symétrique par rapport à zéro mais, comme l'AMR(H) est symétrique, nous avons donc pris des valeurs symétriques. L'intensité du courant utilisé pour mesurer l'AMR est la valeur en Ampère que nous mettons dans la case **I(A)**. L'angle auquel nous faisons la mesure est noté dans la case **Angle**. Si l'indicateur **InUse** est allumé, la mesure est donc en cours. Les cases **H(V)**, **H(V)**, **V(V)**, **R(Ω)** affichent les valeurs actuelles du champ, de l'incrément, de la tension et de la résistance de l'échantillon. La case **Note** est utilisée pour noter toutes les informations concernant l'échantillon. L'afficheur graphique montre en temps réel le profil d'AMR en fonction du champ magnétique appliqué.

Le schéma fonctionnel du programme fait pour mesurer l'AMR en fonction du champ magnétique H est présenté sur la figure 4.8.

Afin de minimiser le temps nécessaire pour la mesure sans perdre des informations importantes, le pas de champ n'est pas fixé. Dans la zone entre $-0.2T$ et $0.2T$ nous prenons plus de point en utilisant un pas petit ($\sim 0.01T$) car le champ du "*saut*" irréversible est toujours plus petit que $0.2T$. Par

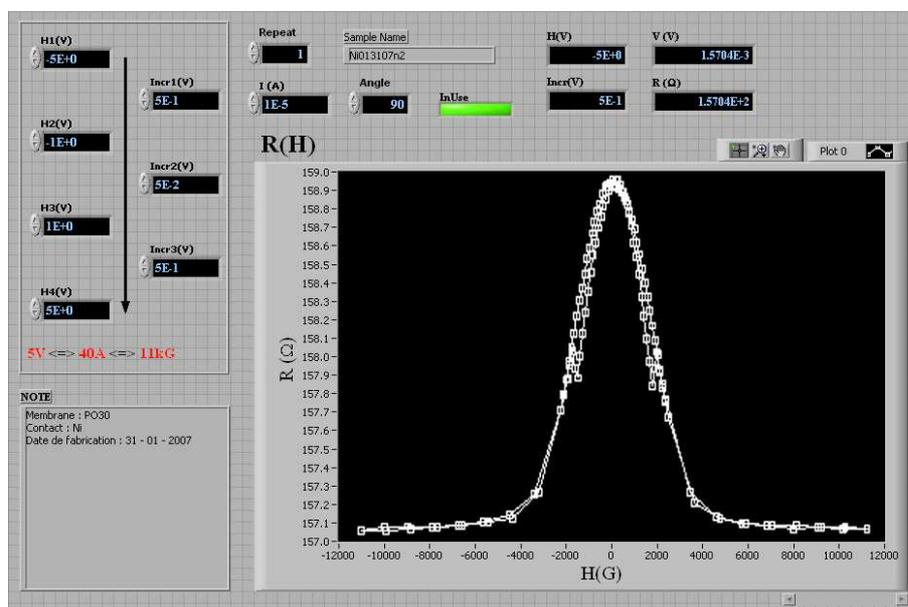


FIG. 4.7 – Face d’avant du programme utilisé pour la mesure AMR en fonction du champ magnétique appliqué à un angle θ entre l’axe du nanofil et la direction du champ magnétique. (Nom du VI (VI = Virtual Instrument) : R(H)FullLoop.vi)

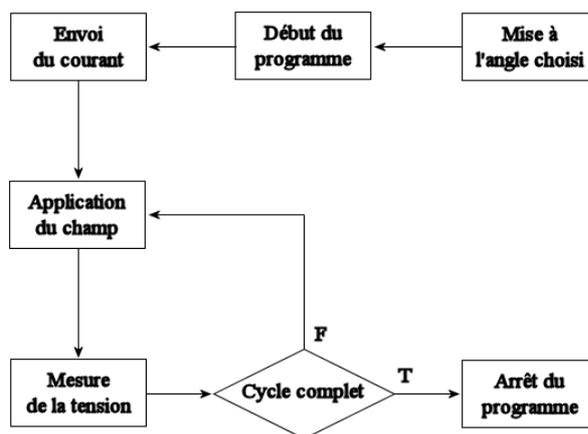


FIG. 4.8 – Schéma fonctionnel du VI fait pour mesurer l’AMR en fonction du champ magnétique H : R(H)FullLoop.vi

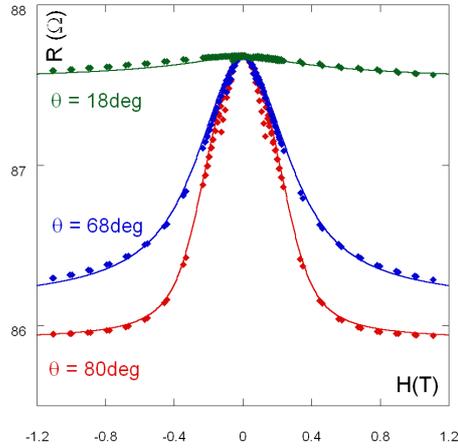


FIG. 4.9 – Profil d’AMR en fonction du champ magnétique appliqué aux différents valeurs nominales de θ (en rouge - $90deg$; en bleu - $60deg$; en vert - $0deg$). Les points sont des données expérimentales, les courbes en continu sont des courbes d’ajustement à partir du modèle *rotation uniforme* de Stoner-Wohlfarth donc le paramètre ajustable est $\mu_0 H_a = 2K/M_s$ (voir chapitre 3 et l’annexe A pour plus de détail). Les valeurs de θ correspondantes sont $80deg$, $68deg$ et $18deg$

contre, dans la zone entre $-H_{max}$ et $-0.2T$ ainsi que celle entre $0.2T$ et H_{max} , nous avons choisi un pas plus grand ($\sim 0.1T$) pour réduire le temps total de la mesure. Le temps nécessaire pour faire un *full-loop* est environ $20mn$.

4.3 Protocole de mesure du TEP

Cette mesure a pour but d’étudier la dépendance du pouvoir thermoélectrique (coefficient de Seebeck) en fonction du champ magnétique extérieur. Il s’agit de mesurer la réponse en tension à une différence de température le long du nanofil.

Afin de générer un gradient de température, nous appliquons sur le chauffage une tension sinusoïdale de fréquence f sous forme : $V = V_0 \cdot \cos(2\pi ft)$. Ceci nous permet d’effectuer une détection du type lock-in pour augmenter le rapport *signal/bruit* en filtrant toutes les autres sources thermoélectriques. Nous utilisons une fréquence assez basse $f = 0.05Hz$ afin d’atteindre le régime quasi-stationnaire.

D’après la loi de Joule, la puissance thermique P_h génère par le chauffage

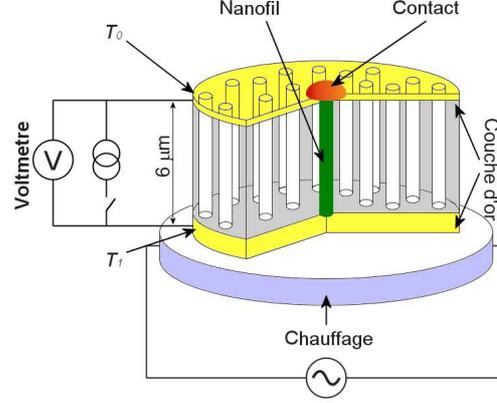


FIG. 4.10 – Schéma de la mesure MTEP. T_0 est la température de la couche d'or au-dessus et T_1 est celle de la couche d'or au-dessous de la membrane.

est :

$$\begin{aligned} P_h &= \frac{V^2}{R_h} = \frac{V_0^2}{R_h} \cdot \cos^2 2\pi ft = P_0 \cdot (\cos 2\pi(2f)t + 1) \\ &= P_0 + P_0 \cdot \cos 2\pi(2f)t \end{aligned} \quad (4.7)$$

où : la résistance du chauffage $R_h \sim 12\Omega$ et $P_0 = V_0/2R_h$

La valeur effective de la tension qu'on applique varie de $3V_{RMS}$ à $5V_{RMS}$ (*Root Mean Squared Voltage*), donc la puissance thermique effective P_h^{eff} est de l'ordre de 1 – 2W. Elle paraît colossale à l'échelle nanométrique du nanofil. En fait, la plupart de la chaleur est dissipée latéralement ; seule une petite portion passe par le nanofil. Afin d'estimer l'intensité du courant de chaleur I_h , nous supposons naïvement que la puissance thermique est répartie de façon homogène sur toute la surface du chauffage, donc sur une surface $S = 2 \times 2mm \times 2mm = 8 \cdot 10^{-6}m^2$ (2 fois la taille du chauffage). Le courant I_h , qui est proportionnel avec la section transversale du nanofil $A = \pi r^2 = 3.14 \times (3 \cdot 10^{-8})^2 \simeq 2.83 \cdot 10^{-15}m^2$, est donc :

$$I_h = P_h^{eff} \cdot \frac{A}{S} = 2W \cdot \frac{2.83 \cdot 10^{-15}m^2}{8 \cdot 10^{-6}m^2} \simeq 1nW \quad (4.8)$$

Comme la surface au-dessus de l'échantillon est couplée avec la température ambiante, la température T_0 est égale celle de l'ambiante et nous supposons qu'elle est constante. La température T_1 oscille entre deux valeurs

T_1^{max} et T_1^{min} à la même fréquence $2f$ du chauffage. Alors, la différence de température au cours du temps entre les deux extrémités du nanofil s'exprime de façon suivante :

$$\Delta T(t) = T_1(t) - T_0 = \Delta T_0 + \delta T \cdot \cos 2\pi(2f)t \quad (4.9)$$

où : $\Delta T_0 = (T_1^{max} + T_1^{min})/2 - T_0$ et $\delta T = (T_1^{max} - T_1^{min})/2$

Dans notre configuration le courant électrique est nul, la tension mesurée est seulement la réponse en tension à la différence de température entre les deux extrémités du nanofil, autrement dit la thermotension. D'après l'équation 3.43, la thermotension est donc :

$$\begin{aligned} V(t) &= -S \cdot \Delta T(t) = -S(\Delta T_0 + \delta T \cdot \cos 2\pi(2f)t) \\ &= V_0 + V_{TEP} \cdot \cos 2\pi(2f)t \end{aligned} \quad (4.10)$$

où : $V_0 = -S \cdot \Delta T_0$ et $V_{TEP} = -S \cdot \delta T$

Comme le chauffage résistif que nous utilisons est macroscopique, tout le dispositif sera chauffé lorsqu'il est mis en marche. Il faut donc un certain temps pour que le système atteigne le régime stationnaire. La tension est donc mesurée au cours du temps à partir du moment quand le chauffage est en marche pour vérifier le régime thermique du dispositif. Sur la figure 4.11, nous voyons bien que la mise en marche du chauffage déclenche tout de suite un changement brutal en tension. Avant la mise en marche du chauffage, la tension mesurée est un *offset* d'environ $500nV$ dû à la différence de potentiel chimique entre les différences métaux présents dans le circuit électrique. Après la mise en marche du chauffage, la thermotension domine. Elle suit l'excitation thermique du chauffage, donc oscille à la fréquence $2f = 0.1Hz$, la double de la fréquence du courant de chauffage I_{ch} que nous envoyons dans le chauffage. Ceci confirme que la tension mesurée est bien la thermotension attendue à la fréquence $2f$. Nous constatons que l'amplitude du signal change très peu après la mise en marche du chauffage. Par contre, la tension moyenne augmente lentement au cours du temps. Ceci signifie que le temps de réponse du nanofil est beaucoup plus petit que celui de l'ensemble du système. Il faut donc attendre 20 à 30 minutes pour que le régime stationnaire soit atteint.

Nous mesurons la différence de potentiel sur le nanofil trois fois par second pendant une durée de 100s. Nous obtenons donc ~ 300 points de mesure de tension afin de déduire la réponse thermoélectrique V_{TEP} du nanofil à l'excitation thermique due au chauffage (Fig. 4.14). Généralement, les valeurs obtenues sont $V_0 \simeq 15\mu V$ et $V_{TEP} \simeq 8.5\mu V$. A partir de ces valeurs, nous pouvons en déduire $\Delta T_0 \simeq 2K$ et $\delta T \simeq 1K$ car le pouvoir thermoélectrique du nickel $S_{Ni} \simeq -8.5\mu V \cdot T^{-1}$ (voir Tab. 3.1).

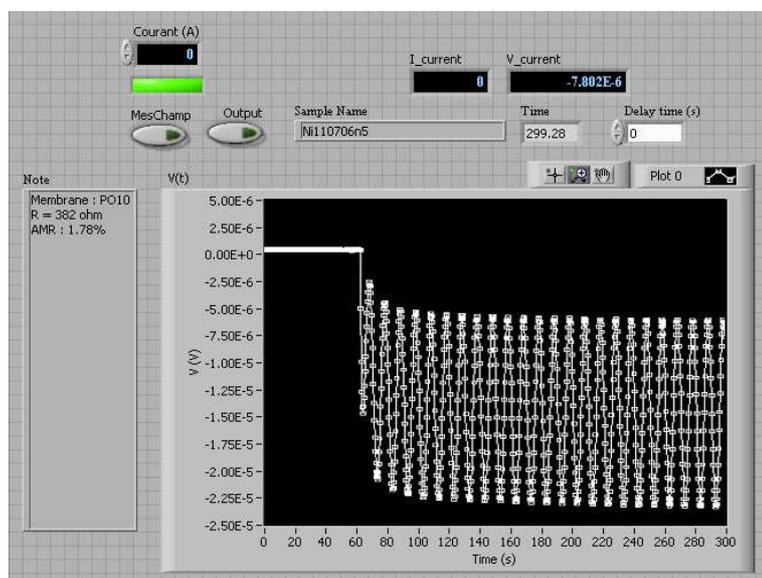


FIG. 4.11 – La mise en marche du chauffage provoque un changement brutal en tension mesurée. (Nom du VI utilisé : EvoTension(I=0).vi).

Nous recalculons ici le flux de chaleur qui passe par le nanofil en utilisant l'équation de Fourier $J_Q = -\kappa\Delta T/\Delta z$. Il est possible d'ignorer le signe moins dans l'équation car nous nous intéressons seulement à la grandeur du flux de chaleur. Le flux de chaleur Φ_Q sera donc :

$$\Phi_Q = J_Q \cdot A = \kappa_{Ni} \frac{\Delta T}{\Delta z} A = 90.9 \times \frac{2}{6 \cdot 10^{-6}} \times 2.83 \cdot 10^{-15} \simeq 85.75 nW \quad (4.11)$$

où : le coefficient de conductivité thermique du Ni $\kappa_{Ni} = 90.9 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, la différence de température nous d'obtenir $\Delta T = 2K$, la longueur du nanofil $\Delta z = l = 6 \cdot 10^{-6} m$, la section transversale du nanofil $A = 2.83 \cdot 10^{-15} m^2$. Ceci confirme le fait que la plupart de la chaleur générée par le chauffage est dissipée latéralement dans le système et seulement une petite part passe par le nanofil qui génère un gradient de température.

Nous répétons la procédure en variant le champ magnétique extérieur de la même façon pour la mesure de la magnétorésistance. Chaque fois que nous faisons varier le champ, nous attendons 5s avant d'acquérir des données afin que le signal soit stabilisé. Une fois les données achevées, nous pouvons en déduire le profil de V_{TEP} en fonction du champ magnétique extérieur H (le protocole d'analyse des données est détaillé un peu plus tard 4.5). Comme $V_{TEP}(H) = -S \cdot \delta T$ et δT ne dépend pas de H , nous avons le profil en fonction de H du pouvoir thermoélectrique du nanofil.

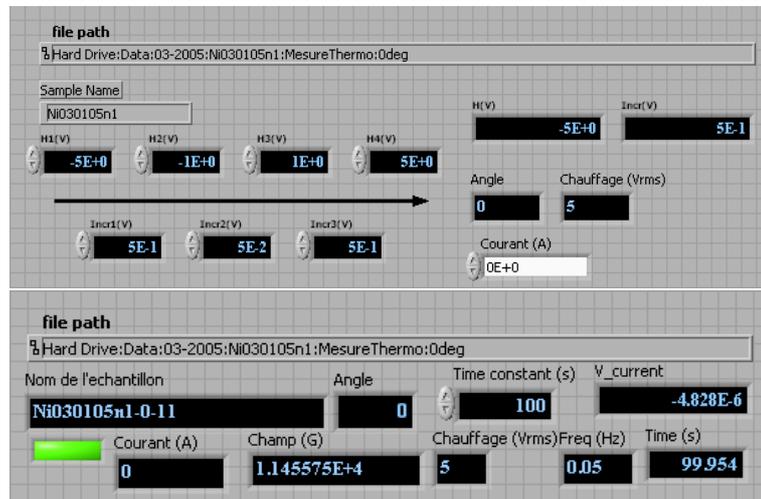


FIG. 4.12 – Les programmes LabView permettent de mesurer la thermoélectricité dépendant du spin. Le VI *Vthermo(H).vi* (en haut) permet de varier le champ magnétique et le VI *Vthermo.vi* (en bas) contrôle la mesure de tension à chaque valeur de champ.

Les programmes utilisés pour la mesure thermoélectrique dépendant du spin sont montrés sur la figure 4.12. Comme il s'agit d'une mesure en fréquence, l'incertitude du temps peut diminuer la précision lorsque nous extrayons l'amplitude du signal. Il n'y a donc pas d'affichage graphique afin d'éviter des erreurs de temps.

Le temps total de cette mesure dure de 2h à 4h selon le nombre de points de champ magnétique pris. Normalement, nous prenons le même nombre de points que celui de la mesure AMR en fonction du champ magnétique H . Comme la mesure dure assez longtemps, il est préférable de vérifier la qualité du signal en tension, i.e. la tension mesurée oscille régulièrement et l'amplitude du signal est assez grande par rapport au bruit blanc du circuit. Pour le faire, il faut simplement relancer le programme **EvoTension(I=0).vi** que nous avons utilisé pour surveiller le régime thermique. En observant l'afficheur graphique, nous pouvons décider de continuer la mesure ou changer l'échantillon.

Lorsque nous augmentons l'intensité du chauffage, les valeurs de V_0 et de V_{TEP} seront plus grandes car ΔT_0 et δT sont plus grandes. En conséquence, le rapport signal/bruit sera plus grand, mais aussi l'échantillon se détériora plus vite. Il faut donc choisir un niveau de chauffage convenable afin d'équilibrer le rapport signal/bruit et la durée de vie de l'échantillon.

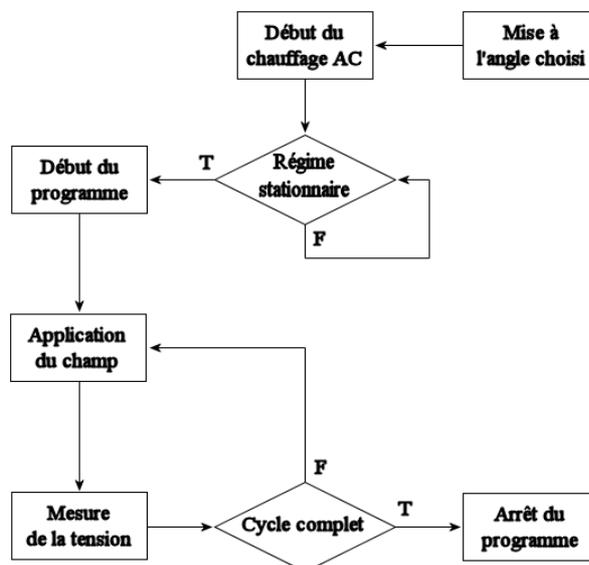


FIG. 4.13 – Schéma fonctionnel de la mesure thermoélectrique dépendant du spin. Le régime thermique est vérifié manuellement avant de lancer le programme de mesure. La variation au cours du temps de la thermotension est mesurée pendant 100s (environ 3 mesure par second) (voir la figure 4.14).

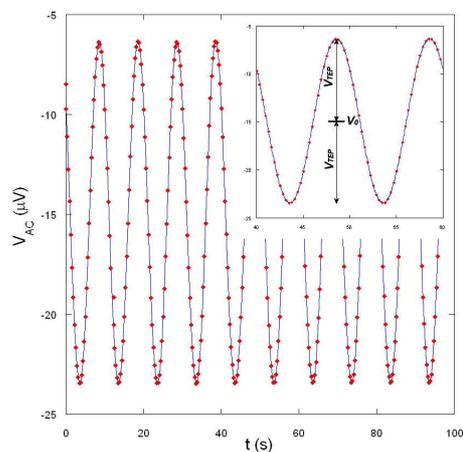


FIG. 4.14 – Réponse thermoélectrique à l'excitation thermique due au chauffage alternatif en courant électrique nul. Les points en rouge sont des points de mesure. La ligne continue en bleue est la courbe d'ajustement avec l'équation 4.10

La possibilité de changer d'angle θ entre l'axe du nanofil et le champ H nous permet d'étudier l'anisotropie du pouvoir thermoélectrique du nanofil.

4.4 Protocole de mesure de la susceptibilité χ_T

Le protocole de mesure de la susceptibilité thermique est similaire avec celui de mesure thermoélectrique sauf que, pendant l'excitation thermique alternative, nous injectons un courant direct I_{DC} dans le nanofil à l'aide de la source de courant *Keithley224* que nous utilisons pour mesurer l'AMR (voir section 4.1). Autrement dit, nous mesurons ici l'AMR sous l'excitation thermique alternative donc le schéma est présenté dans la figure 4.1.c.

Afin d'étudier l'effet transfert de spin, l'intensité du courant injecté est augmentée jusqu'à quelques micro ampère, donc la densité correspondante peut atteindre $45MA/cm^2$.

Le fait d'envoyer un courant direct dans le nanofil change complètement la nature de la mesure. La thermotension devient négligeable par rapport à la tension due au courant électrique. Nous mesurons ici la variation de résistance de l'échantillon due à la variation de température moyenne du nanofil (voir Fig. 4.15).

Comme notre système est nanoscopique, une sonde de température macroscopique perturbera la mesure. Nous utilisons la résistance du nanofil lui-même comme une sonde de température nanoscopique qui n'influence pas l'étude. La température moyenne du nanofil est déduite à partir de la température ambiante à l'aide du coefficient de température α_m que nous avons mesuré pour les nanofils de Ni électrodéposé (voir Fig. 4.15) :

$$T = T_{amb} + \frac{R(T) - R_{amb}}{\alpha_m R_{amb}} \quad (4.12)$$

où : T est la température du nanofil ; T_{amb} la température ambiante ; R_{amb} est la résistance du nanofil mesurée à l'ambiante ; $R(T)$ est la résistance du nanofil mesurée à température T .

En variant le champ magnétique appliqué, nous mesurons donc des cycles d'AMR à des températures différentes. Ceci nous permet de mesurer la susceptibilité thermique de la magnétorésistance.

Nous commençons avec un courant de faible intensité de l'ordre de $20\mu A$ (environ $0.2MA/cm^2$), qui n'a pas d'effet du point de vue de *spin transfer*. En suite, nous augmentons progressivement l'intensité du courant injecté dans le nanofil jusqu'à quelques milliampères (environ $20-40MA/cm^2$). Comme l'effet transfert de spin se produit lorsque la densité du courant injecté atteint l'ordre de grandeur $10MA/cm^2$ [22, 38, 41, 42], nous pouvons donc étudier

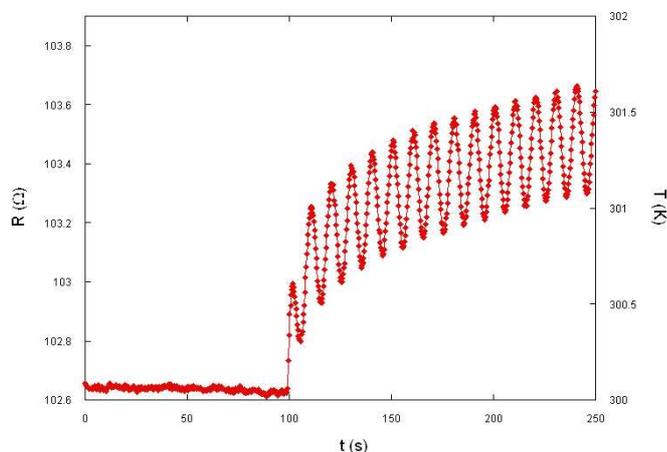


FIG. 4.15 – Variation de résistance de l'échantillon due à la variation de température moyenne du nanofil lors de la mise en marche du chauffage alternatif (l'échelle à gauche). La température correspondante est calculée à partir du coefficient de température α_m mesuré pour les nanofils de Ni électrodéposé (l'échelle à droite) (voir l'équation 4.12)

l'effet du courant sur la susceptibilité thermique de la magnétorésistance et en déduire la production d'entropie due au transfert de spin en comparant les résultats obtenus.

Comme il s'agit d'une étude comparative, il est important de refaire la mesure à courant faible après quelques mesures à courant fort afin de vérifier s'il y a pas de changement du système étudié.

4.5 Protocole d'analyse

Comme nous avons déjà mentionné, nous choisissons le technique lock-in afin d'augmenter la précision de la mesure. Avec les protocoles décrits dans la partie précédente, nous avons acquis les données en fonction du temps (voir la figure 4.14). La fréquence utilisée est très basse (pour atteindre le régime thermique stationnaire), ce qui rend la détection lock-in avec un *low-pass filter* plus très fiable. Afin de déduire l'amplitude du signal à la fréquence intéressée ($2f = 0.1Hz$), nous supposons que le signal $V(t)$ comporte trois terme : un terme constant, un terme à la fréquence $f = 0.05Hz$ pour l'induction direct du courant que nous injectons dans le chauffage, et un terme à la fréquence $2f = 0.1Hz$ pour la réponse à l'excitation thermique due à chauffage Joule du chauffage. Pour ce dernier terme, le signe du coefficient peut changer avec

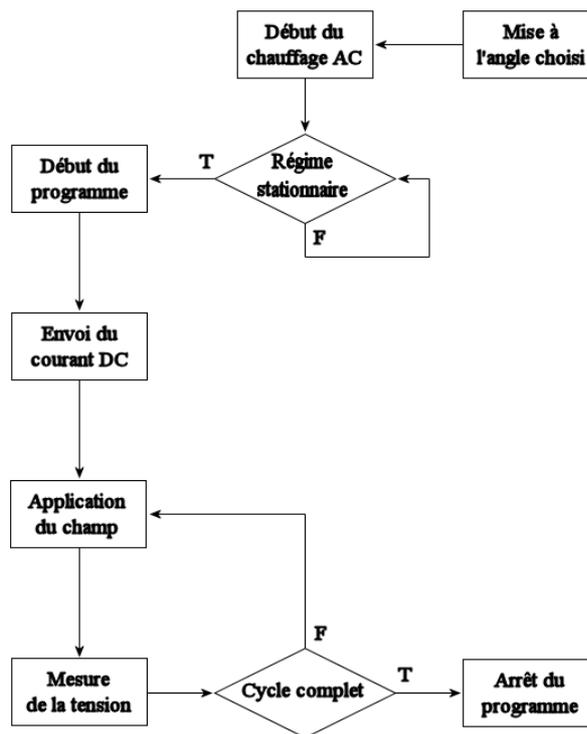


FIG. 4.16 – Schéma fonctionnel de la mesure de susceptibilité thermique de la magnétorésistance. Le régime thermique est vérifié manuellement avant de lancer le programme de mesure. La variation de tension au cours du temps est mesurée pendant 100s (environ 3 mesures par seconde). Il faut relancer le programme avec une nouvelle valeur du courant DC afin de faire l'étude en fonction du courant injecté.

la valeur de la phase. Afin d'éviter ce problème, nous remplaçons le terme en cosinus de $2f$ pour un terme en cosinus carré de f .

Il s'agit donc d'ajuster numériquement le signal sinusoïdal en tension que nous avons obtenu avec l'expression suivante :

$$V(t) = a0 + a1 \cos(2\pi ft + a2) + a3 \cos^2(2\pi ft + a4) \quad (4.13)$$

L'ajustement est le même pour la mesure thermoélectrique dépendant du spin ainsi que la mesure de la susceptibilité magnétique de la magnétorésistance. Par contre, la nature physique de chaque paramètre peut être différente :

- $a2$, $a4$ sont les phases
- $a1$ est l'amplitude de l'induction direct à fréquence f et il est de l'ordre de quelques dizaines de nanovolt (très petit par rapport à $a3$)
- $a0$ est le terme constante. Dans la mesure thermoélectrique dépendant du spin, il s'agit simplement l'*offset* du circuit électrique. Par contre, dans la mesure susceptibilité thermique de la magnétorésistance $a0 = I_{DC} \cdot R_{AMR}$.
- $a3$ est l'amplitude de la réponse à fréquence $2f = 0.1Hz$ à l'excitation thermique. Dans la mesure thermoélectrique dépendant du spin, il est la réponse thermotension (voir chapitre 5). Dans la deuxième mesure, il est proportionnel avec la susceptibilité thermique de la magnétorésistance (voir chapitre 6).

En premier temps, l'ajustement est fait manuellement avec *Kaleidagraph*, un logiciel spécialisé pour tracer des graphes. Il faut donner des valeurs approximatives des coefficients d'ajustement. Le programme nous rend les meilleurs coefficients d'ajustement en utilisant l'ajustement au moindre χ^2 ou la méthode du chi-carré. La qualité de l'ajustement est vérifiée visuellement en traçant la courbe d'ajustement avec les points de données. Afin d'augmenter la précision, nous enlevons des mauvais points (des artéfacts) en faisant l'ajustement deux fois avec les étapes suivantes :

1. Tracer le graphe $V(t)$
2. Appliquer l'ajustement la première fois
3. Soustraire les valeurs expérimentales par les valeurs obtenues à partir de la courbe d'ajustement afin d'obtenir les résidus
4. Tracer les résidus et masquer les points anormaux (des artéfacts)
5. Retracer le graphe $V(t)$ (sans les points qui sont masqués)
6. Appliquer à nouveau l'ajustement pour obtenir les coefficients de l'ajustement

Il faut répéter la procédure pour toutes les valeurs du champ. Il s'agit donc du travail d'un appareil lock-in numérique à une très basse fréquence. Malgré la précision obtenue, ce travail est long, répétitif et fatigant.

Avec LabView, nous avons fait un programme qui permet de traiter automatiquement les données. Il suffit d'entrer le chemin du répertoire qui contient les données, l'analyse des données se fait automatiquement et le résultat est enregistré dans un fichier texte dans le même répertoire des données. Il s'agit donc d'utiliser la méthode de Levenberg-Marquardt pour ajuster des fonctions non-linéaire multi-valeur. Cette méthode consiste aussi à minimiser le χ^2 .

Comme les valeurs initiales varient d'un point de mesure à l'autre, il faut donc trouver une façon automatique d'obtenir correctement ces valeurs. Ceci est très important car il n'y a pas forcément un bon ajustement si les valeurs initiales sont mauvaises. Nous avons remarqué que les phases **a2** et **a4** jouaient un rôle important. Il est évident car les mesures sont basées sur la méthode *phase sensitive detection*. Comme elles ne varient que dans l'intervalle $[0, 2\pi]$, il suffit de balayer toute l'intervalle pour avoir la bonne valeur. Comme l'induction direct à fréquence $f = 0.05Hz$ est assez petit, nous balayons tout d'abord **a4** en prenant **a2** = 0. Nous obtenons donc des meilleurs coefficients d'ajustement avec **a2** = 0 qui minimisent le χ^2 . En suite, nous faisons balayer **a2** en gardant les autres coefficients comme des valeurs initiales et nous obtenons les meilleurs coefficients d'ajustement.

Comme le processus est complètement automatique, il est important de vérifier le résultat obtenu en comparant avec le même résultat obtenu manuellement avec *Kaleidagraph*. Les résultats obtenus par les deux méthodes, manuelle et automatique, sont identiques.

L'analyse préliminaire est donc automatisée. Nous allons discuter les résultats des mesures dans les chapitres qui suivent.

Chapitre 5

Propriétés thermoélectriques dépendant du spin

5.1 Introduction

L'électronique de spin décrit le transport des électrons sous l'effet d'un champ électrique lorsque l'on prend en compte la polarisation en spins des électrons de conduction. Dans la plupart des cas, le modèle à deux canaux de conduction rend très bien compte des observations de transport dépendant du spin [10]. En effet, l'ensemble des électrons de conduction peut alors être décomposé en deux sous-ensembles, qui sont les électrons de spin **up** et les électrons de spin **down**, pour lesquels la direction **up** et **down** est fixée par rapport à un axe de quantification donné par l'aimantation. On a donc une variable interne, le spin, qui conduit à considérer deux types d'électrons, avec une transformation d'un type à l'autre. Cette transformation est équivalente à une réaction chimique qui transforme une particule en une autre. Les coefficients de transport habituels sont dès lors indexés par les valeurs de la variable interne. Dans le contexte de la GMR, la variable interne est discrète et prend deux valeurs $\{\uparrow, \downarrow\}$. Les conductivités σ_{\uparrow} ou σ_{\downarrow} caractérisent chacun des canaux.

Ce modèle peut être étendu naturellement pour des variables internes qui prennent plus de deux valeurs. En particulier, on sait que la conductivité varie suivant la bande à laquelle appartient l'électron de conduction : bande s ou bande d avec des relaxations d'une bande à l'autre.

L'intérêt de l'approche thermocinétique est de pouvoir généraliser le modèle à deux canaux à un nombre quelconque de canaux d'une part (y compris à une infinité, comme pour la description de l'aimantation dans la référence [32]), et aux courants de chaleurs, d'autre part. L'étude des systèmes avec

interaction spin - orbite, et en particulier les métaux qui sont le siège d'un effet de magnétorésistance d'anisotropie (l'AMR), conduit nécessairement à introduire les bandes s et d . Par exemple, l'AMR provient de l'interaction entre les électrons de conduction s et le réseau qui porte l'aimantation ferromagnétique, et qui est décrit par les électrons de coeur, c'est-à-dire les électrons d (voir chapitre 3) dans le cas des métaux que nous étudions (Ni, Co, Fe). Nous aurons donc à considérer quatre canaux : les deux canaux s et d avec les deux directions de spin.

Le modèle développé ci-dessous prend en compte deux canaux quelconques appelés α et γ . Comme nous le verrons, il s'agit de la relaxation de loin la plus probable entre les s majoritaires (\uparrow) vers les d majoritaires (\uparrow). Ce modèle conduit immédiatement (Equation 3.50) à prendre en compte une résistance d'interface, parfaitement analogue à la magnétorésistance géante, mais qui provient de la relaxation ci-dessus entre électrons de conduction s et d , imposée par l'AMR : l'interface met hors équilibre les deux populations s et d de spin **up**, provoque la relaxation des deux types de porteurs pour retrouver l'équilibre loin de l'interface. Cette redistribution conduit à une résistance supplémentaire (Equation 3.64). **La question à l'origine de ce travail est de chercher à mesurer cette résistance supplémentaire.** Le problème que nous rencontrons expérimentalement pour une mesure directe de cette contribution à la résistance d'interface est la contribution de l'AMR, qui est beaucoup plus importante. Pour cette raison, nous travaillerons avec la puissance thermoélectrique. En effet, comme il n'y a pas de courant électrique I , il n'y a pas de contribution de l'AMR (en revanche, il pourrait y avoir une contribution de la GMR). Le modèle est donc étendu en introduisant aussi les courants de chaleurs pour chaque canal.

5.2 MTEP hors-équilibre

Dans les structures métalliques, la chaleur est aussi transférée par des électrons de conduction. Il est donc possible d'imposer un courant de charges électriques en appliquant un gradient de température, puis mesurer le pouvoir thermoélectrique (TEP), ou le potentiel électrique correspondant. Le TEP est généralement caractérisé par le coefficient Seebeck du matériau massif, mesuré en imposant un gradient de température sous la condition d'un courant électrique nul (circuit ouvert). De même que pour les propriétés de conduction avec la GMR et l'AMR, nous observons que le TEP est composée d'une contribution du massif et d'une contribution hors-équilibre due aux interfaces.

Des études précédentes sur la contribution due aux interfaces du pouvoir

magnéto-thermoélectrique sont réalisées avec des structures GMR dont la taille typique des couches magnétiques est inférieure à la longueur de diffusion du spin. Les résultats expérimentaux montre que le pouvoir thermoélectrique dépendant du spin est quasiment proportionnel à la GMR. Dans ce travail, nous montrerons que cela est similaire pour le cas d'une seule couche ferromagnétique avec de l'AMR.

Dans le calcul qui suit, le gradient de température est supposé uniforme : $\nabla T = \Delta T/\Lambda$, où Λ est la longueur du nanofil et ΔT est la différence de température entre ses deux extrémités.

Les équations d'Onsager s'écrivent en ajoutant les flux de chaleur $J_{\alpha\gamma}^Q$ pour les deux canaux :

$$\begin{aligned}
J_\alpha &= -\frac{\sigma_\alpha}{e} \frac{\partial \mu_\alpha}{\partial z} + S_\alpha \sigma_\alpha \frac{\partial T}{\partial z} \\
J_\gamma &= -\frac{\sigma_\gamma}{e} \frac{\partial \mu_\gamma}{\partial z} + S_\gamma \sigma_\gamma \frac{\partial T}{\partial z} \\
J_\alpha^Q &= \lambda_\alpha \frac{\partial T}{\partial z} - \frac{\pi_\alpha}{e} \frac{\partial \mu_\alpha}{\partial z} \\
J_\gamma^Q &= \lambda_\gamma \frac{\partial T}{\partial z} - \frac{\pi_\gamma}{e} \frac{\partial \mu_\gamma}{\partial z} \\
\dot{\Psi}_{\alpha\gamma} &= L(\mu_\alpha - \mu_\gamma)
\end{aligned} \tag{5.1}$$

où : S_i et λ_i , $i = \{\alpha, \gamma\}$, sont respectivement les coefficients de Seebeck et de Fourier de chaque canal et π_i/σ_i est le coefficient de Peltier.

Ci-après, nous n'étudions plus le flux de chaleur de chaque canal $J_{\alpha\gamma}^Q$. Le pouvoir thermoélectrique est déduit à partir de l'équation 3.44 avec les mêmes étapes dans le calcul de la résistance hors-équilibre (section 3.4.1) en tenant compte de la condition $J_t = 0$. Dans le matériau massif, la condition d'équilibre locale nous mène à la relation suivante :

$$J_t(\infty) = -\sigma_t \frac{\partial \Phi}{\partial z}(\infty) + S_t \sigma_t \frac{\Delta T}{\Lambda} = 0 \tag{5.2}$$

ça nous donne :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial z}(\infty) = S_t \sigma_t \frac{\Delta T}{\Lambda} \tag{5.3}$$

où :

$$S_t = \frac{\sigma_\alpha S_\alpha + \sigma_\gamma S_\gamma}{\sigma_\alpha + \sigma_\gamma} \tag{5.4}$$

est la référence du pouvoir thermoélectrique (TEP) correspondant au matériau massif ou le TEP à l'équilibre.

Le courant effectif (analogue au courant total dans le calcul pour la GMR) $J_{eff} = -S_t \sigma_t \cdot (\Delta T / \Lambda)$ est différent de chaque côté de la jonction (comme la conductivité σ_t , le coefficient Seebeck S_t est discontinu à l'interface).

A partir de l'équation 5.1 et 3.55, la continuité des courants $J_\alpha^I(0) = J_\alpha^{II}(0)$ conduit à une séparation du potentiel chimique à la surface :

$$\begin{aligned} \Delta\mu(0) &= (\sigma_\alpha^I (S_\alpha^I - S_t^I) - \sigma_\alpha^{II} (S_\alpha^{II} - S_t^{II})) \\ &\quad \times \left(\sqrt{\frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I L^I}{\sigma_t^I}} + \sqrt{\frac{\sigma_\alpha^{II} \sigma_\gamma^{II} L^{II}}{\sigma_t^{II}}} \right)^{-1} e \frac{\Delta T}{\Lambda} \end{aligned} \quad (5.5)$$

La séparation du potentiel chimique $\Delta\mu(0)$ est analogue avec celle calculée dans l'équation 3.56, section 3.4.1, en introduisant le courant effectif $J_{eff} = -S_t \sigma_t (\Delta T / \Lambda)$ nous pouvons récrire $\Delta\mu(0)$ de façon suivante :

$$\begin{aligned} \Delta\mu(0) &= e \left(J_{eff}^I \frac{S_\alpha^I - S_\gamma^I}{S_t^I} \frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I} - J_{eff}^{II} \frac{S_\alpha^{II} - S_\gamma^{II}}{S_t^{II}} \frac{\sigma_\alpha^{II} \sigma_\gamma^{II}}{\sigma_t^{II}} \right) \\ &\quad \times \left(\sqrt{\frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I L^I}{\sigma_t^I}} + \sqrt{\frac{\sigma_\alpha^{II} \sigma_\gamma^{II} L^{II}}{\sigma_t^{II}}} \right)^{-1} \end{aligned} \quad (5.6)$$

Ici, encore une fois (voir l'équation 3.50), le pouvoir thermoélectrique hors-équilibre Σ^{ne} peut être défini à partir de la référence correspondante à la condition d'équilibre local, $\Delta\mu_{eq} = 0$ et $J_\alpha = J_\gamma = 0$:

$$\Sigma^{ne} \frac{\Delta T}{\Lambda} = \frac{1}{e} \int_A^B \left(\frac{\partial \mu_\alpha}{\partial z} - e \frac{\partial \Phi}{\partial z} \right) dz = \frac{1}{e} \int_A^B \left(\frac{\partial \mu_\alpha}{\partial z} - e S_t \frac{\partial T}{\partial z} \right) dz \quad (5.7)$$

où : A se situe dans la couche I et B dans II , à une distance correspondante Λ^I et Λ^{II} suffisamment loin de l'interface (dans le matériau massif). Nous obtenons la même expression que celle calculée pour la résistance hors-équilibre dans l'équation 3.52 :

$$\Sigma^{ne} \frac{\Delta T}{\Lambda} = - \left(\frac{\sigma_\alpha^I - \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II} - \sigma_\gamma^{II}}{\sigma_t^{II}} \right) \frac{\Delta\mu(0)}{2e} \quad (5.8)$$

Prendre en compte l'équation 5.5, nous déduisons le pouvoir thermoélec-

trique (TEP) hors-équilibre :

$$\begin{aligned} \Sigma^{ne} = & -\frac{1}{2} \left(\frac{\sigma_\alpha^I - \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I} - \frac{\sigma_\alpha^{II} - \sigma_\gamma^{II}}{\sigma_t^{II}} \right) \left(\frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I} (S_\alpha^I - S_\gamma^I) - \frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I}{\sigma_t^I} (S_\alpha^{II} - S_\gamma^{II}) \right) \\ & \times \left(\sqrt{\frac{\sigma_\alpha^I \sigma_\gamma^I L^I}{\sigma_t^I}} + \sqrt{\frac{\sigma_\alpha^{II} \sigma_\gamma^{II} L^{II}}{\sigma_t^{II}}} \right)^{-1} \end{aligned} \quad (5.9)$$

L'équation ci-dessus est une expression générale du pouvoir magnétothermoélectrique (MTEP) hors-équilibre. Dans la suite, nous allons la réécrire en utilisant le coefficient de transport asymétrique β . Ici, nous définissons les paramètres $S_+ = (S_\alpha + S_\gamma)/2$ et $S_- = (S_\alpha - S_\gamma)/2$. Avec la définition du β , nous avons $S_t = (1/2)[(1 + \beta)S_\alpha(1 - \beta)S_\gamma]$, le coefficient de Seebeck global est donc :

$$S_t = S_+ + \beta S_- \quad (5.10)$$

Le pouvoir thermoélectrique hors-équilibre d'interface prend la forme suivante :

$$\Sigma^{ne} = -(\beta^I - \beta^{II}) \frac{\sigma_t^I [1 - (\beta^I)^2] S_-^I - \sigma_t^{II} [1 - (\beta^{II})^2] S_-^{II}}{\sqrt{eL^I \sigma_t^I [1 - (\beta^I)^2]} + \sqrt{eL^{II} \sigma_t^{II} [1 - (\beta^{II})^2]}} \quad (5.11)$$

Il est possible d'aller plus loin en utilisant la relation microscopique de Mott (en supposant qu'il y a un équilibre thermique local) :

$$S_{\alpha\gamma} = \frac{a}{\sigma_{\alpha\gamma}} \left(\frac{\partial \sigma_{\alpha\gamma}}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon_F} \quad (5.12)$$

où $a = \pi^2 k_B^2 T / 3e$, ϵ est l'énergie d'électron et ϵ_F est l'énergie de Fermi.

$$S_+ = S_t - a \frac{\beta \beta'}{1 - \beta^2}, S_- = a \frac{\beta'}{1 - \beta^2} \quad (5.13)$$

et

$$S_t = \frac{a}{\sigma_t} \left(\frac{\partial \sigma_t}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon_F} \quad (5.14)$$

est le pouvoir thermoélectrique de référence défini dans l'équation 5.4, et $\beta' = (\partial \sigma_t / \partial \epsilon)_{\epsilon_F}$ est la dérivée du coefficient de la conductivité asymétrie β prise au niveau de Fermi. L'équation 5.9 devient :

$$\Sigma^{ne} = -\frac{a(\beta^I - \beta^{II})(\sigma_t^I \beta'^I - \sigma_t^{II} \beta'^{II})}{\sqrt{eL^I \sigma_t^I [1 - (\beta^I)^2]} + \sqrt{eL^{II} \sigma_t^{II} [1 - (\beta^{II})^2]}} \quad (5.15)$$

5.2.1 MTEP correspondant à la GMR et à la NeAMR

Dans le cas des structures du type *spin-valves* (i.e., des jonctions constituées de couches avec des aimantations parallèles ou anti-parallèles) nous considérons que les couches ferromagnétiques sont identiques, nous avons $\beta_s = \beta^I = -\beta^{II}$ et aussi $\beta'_s = \beta'^I = -\beta'^{II}$:

$$\Sigma_{GMR}^{\uparrow\downarrow} = -2a\sigma_t \left(\frac{\beta'}{\beta} \right) R_{GMR}^{\uparrow\downarrow} \quad (5.16)$$

D'après l'équation 3.61, à β fixé, $\Sigma_{GMR}^{\uparrow\downarrow}$ est proportionnelle à la longueur de diffusion l_{diff} . Le MTEP associé avec la GMR sera nul si le paramètre β' est zéro - i.e., si la conductivité asymétrique ne dépend pas d'énergie. Le coefficient de proportionnalité entre R_{GMR}/R_0 et $\Sigma^{GMR}/(\Lambda S_t)$ est observé expérimentalement [15, 17, 95, 52, 53, 54], et le facteur de proportionnalité $P_{GMR} = -(2a/S_t)(\beta/\beta')$ est de l'ordre de 1-10 dans des conditions expérimentales normales.

D'ailleurs, la contribution hors-équilibre due à l'AMR dans une jonction normale/ferromagnétique est déduite en prenant compte les canaux de relaxation $s - d$ (voir 3.4.4), $\beta_{sd}^N = 1$ et $\beta_{sd}'^N$:

$$\Sigma_{AMR}^{N-F} = 2a\sigma^F(\theta) \left(\frac{\beta'(\theta)}{1 - \beta(\theta)} \right) R_{AMR}^{N-F}(\theta) \quad (5.17)$$

D'après l'équation 3.64, à β fixé, Σ_{AMR}^{N-F} est proportionnel à l_{diff} . L'expression $\Sigma_{AMR}^{N-F} = P_{AMR}[R_{AMR}^{N-F}/R_0(\theta)]$ (où $R_0(\theta) = \sigma_t(\theta)/\Lambda$) montre qu'une relation simple, similaire à celle reliant la GMR au MTEP, relie la NeAMR au MTEP correspondant. Le facteur de proportionnalité $P_{AMR} = (2a/S_t)[\beta'/(1-\beta')]$ (appelé ratio AMR/MTEP dans la section suivante) peut être mesuré, et la NeAMR, décrite dans l'équation 3.63, est alors obtenue indépendamment (e.g., de la configuration proposée dans [93, 94]).

5.2.2 Mesure du MTEP

Il est important de mentionner que la mesure du pouvoir thermoélectrique (TEP) de l'interface exige nécessairement la mesure du TEP du matériau massif connecté au voltmètre par des fils de référence (voir Fig. 5.1). Dans notre expérience, une différence de température $\Delta T = T_B - T_A$ est maintenue entre les extrémités A et B de la jonction (située au point J), tandis que le voltmètre et les terminaux des fils de référence sont maintenus à une température T_0 . Si le TEP des fils de référence est notée S_r , la différence de

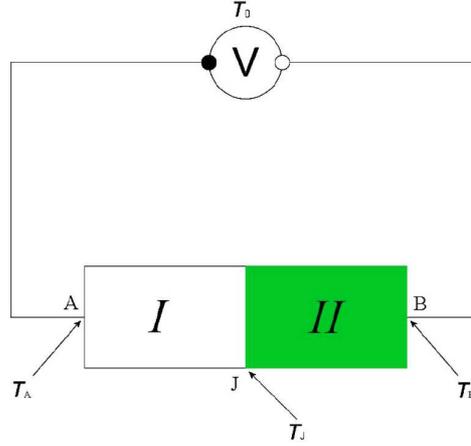


FIG. 5.1 – La structure consiste de deux couches métalliques de longueur AJ et BJ avec un gradient de température typique $\Delta T/AB$. Elle est connectée à un voltmètre à température T_0 par deux fils de référence.

tension totale mesurée dans le circuit ouvert consiste en le TEP du matériau massif et celui de l'interface :

$$V_{TEP} = \Delta T \left(\frac{(AJ)S_t^I + (JB)S_t^{II}}{AB} - S_r \right) + \Sigma^{ne} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)_J \quad (5.18)$$

Il faut remarquer que le terme du matériau massif est indépendant de la configuration magnétique (i.e., indépendant de l'angle φ) sous une condition de restriction faible : $\sigma_t(\epsilon, \varphi) = g(\varphi)\sigma_t(\epsilon)$ (voir l'équation 5.14), où $g(\varphi)$ est une fonction quelconque prenant en compte la conductivité anisotrope. Par contre, le terme hors-équilibre est toujours dépendant de φ à travers les paramètres $\beta(\varphi)$ ou $l_{sd}(\varphi)$. En conséquence, on s'attend à une contribution de MTEP qui peut être mesurée en fonction du champ magnétique extérieur, et que cette contribution soit dominé par l'effet hors-équilibre de l'interface. D'autre part, l'amplitude de l'effet hors-équilibre de l'interface dépend de l'amplitude du gradient de température à la jonction $(\partial T/\partial z)_J$. L'effet est donc plus grand dans le cas d'un gradient de température non homogène si la jonction est située dans la zone où il y a une forte variation de température - i.e., près de l'interface avec la source de chaleur ou cryostat. En revanche, si la jonction est placée loin de la source de chaleur ou cryostat, l'effet sera plus petit.

Comme pour l'AMR, la dépendance en φ du TEP (ou bien du MTEP)

est définie par le ratio :

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{\max\{V(\varphi)\} - \min\{V(\varphi)\}}{\min\{V(\varphi)\}} \quad (5.19)$$

Dans la section suivante, la quantité $V(\theta)$ est mesurée en fonction de l'amplitude et de la direction du field magnétique appliqué \vec{H} .

5.3 Résultats expérimentaux

Comme nous avons déjà mentionné, la relation linéaire entre la GMR ($\Delta R/R$) et le MTEP correspondant ($\Delta V/V$) est observé dans des différentes structures du type vanne de spin [15, 16, 17, 95, 52, 53, 54, 19]. Le ratio GMR/MTEP est de l'ordre de 1-10 dans des échantillons GMR comportés d'environ 150 bi-couches Co/Cu électrodéposé où la GMR et le MTEP sont de l'ordre de 10% [95]. Le travail présenté ici focalise sur le MTEP et le rôle du contact dans des nanofils de Ni individuellement contacté. Les résultats expérimentaux présentés dans la suite sont mesurés à température de l'ambiante. Tous les nanofils comportent deux contacts N/F et F/N, et un zone ferromagnétique massif (F). Le calcul théorique présenté dans la section 5.2 prédit qu'une magnétorésistance hors-équilibre de l'interface et le MTEP correspondant sera présenté aux jonctions.

En changeant le bain électrolytique, nous pouvons contacter le nanofil, soit avec le même matériau que celui du nanofil (Ni) ou soit avec un autre matériau (par exemple, un matériau non-ferromagnétique comme du cuivre ou de l'or). Dans le premier cas, la jonction F/N coïncide avec l'interface de la couche d'or au-dessus (i.e., le réservoir de chaleur), et dans le deuxième cas, la jonction F/N est localisé loin dans le nanofil. Les contacts (Ni, Cu ou Au) ont la forme d'un champignon au-dessus de la membrane [96, 97, 108].

Nous nous attendons à ce que le contact ferromagnétique qui se situe au-dessus de la membrane (le champignon de Ni) change les propriétés de l'interface pour deux raisons : dues à la non-uniformité de la densité du courant polarisé en spin [98] et à la présence des configurations magnétique spécifique qui ne sont pas celles présentes dans le nanofil. Il faut noter que le problème lié à l'accumulation de spin et la GMR générée par des parois de domaine magnétique est déjà étudié en détail sur le même type d'échantillon électrodéposé [89]. *Les conditions qui sont nécessaires afin d'obtenir une contribution du type GMR, la présence d'un parois de domaine ne sont pas satisfaites* dans le cadre de ce travail [99].

Ici, les résultats sont obtenus sur la base d'une étude comparative entre des échantillons avec différents types de contact pour un nombre suffisant

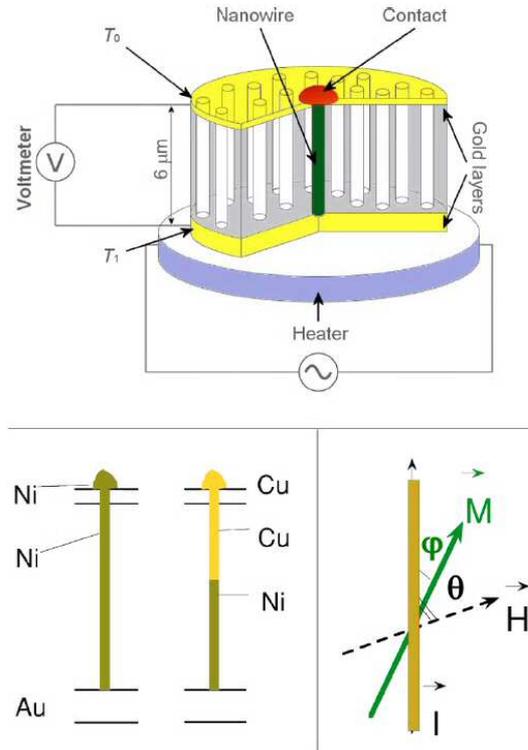


FIG. 5.2 – Géométrie et deux types de contacts pour un seul nanofil contacté. Le chauffage au-dessous est alimenté par un générateur de tension à la fréquence f . T_0 et T_1 sont les températures des thermostats.

d'échantillons (quelques dizaines). Les échantillons présentés dans la suite sont nommés comme suivante : l'échantillon A, nanofil de Ni contacté avec du nickel (Ni) (environ $38\mu V$ TEP et 3% MTEP) ; l'échantillon B, nanofil de Ni contacté avec du cuivre (Cu) ($-4.5\mu V$ TEP et pas de MTEP) ; l'échantillon C, nanofil de Ni contacté avec du nickel (Ni) ($-7\mu V$ TEP et environ 10% MTEP) ; l'échantillon D, nanofil de Ni contacté avec de l'or (Au) ($-31.5\mu V$ TEP et pas de MTEP) ; l'échantillon E, nanofil de Ni contacté avec du nickel (Ni) (environ $-6.4\mu V$).

Les mesures thermoélectriques sont effectuées avec un chauffage résistif compact placé au-dessous de la membrane et connecté à un générateur de tension de $3V - 5V$ (Fig. 5.2) Un signal sinusoïdal de fréquence $f = 0.05Hz$ est injecté dans le chauffage. A cette fréquence, un régime thermique stationnaire est atteint et le signal thermoélectrique est détecté à $2f = 0.1Hz$. L'amplitude du signal $2f$ donne la TEP : $\Sigma^{ne} \Delta T / \Lambda$ (voir l'équation 5.18). Avec notre configuration expérimentale, l'amplitude de la TEP varie entre $5\mu V$ et

$50\mu V$, donc la différence de température est de l'ordre de $\Delta T \approx 1K - 3K$, mesurée à l'échelle macroscopique (les valeurs de coefficient de Seebeck pour du massif sont : $S_t^{Ni} \simeq -13\mu V/K$ et $S_t^{Cu} \simeq 1.8\mu V/K$). Le gradient de température est donc $\Delta T/\Lambda \approx 3 \times 10^5 K/m$. Ces valeurs sont proches à celles mesurées avec des multicouches électrodéposées Co/Cu/Co du type vanne de spin [95, 52, 53, 54]. Cependant, la différence de température n'est pas strictement la même d'un échantillon à l'autre car elle dépend des détails des structures qui dissipent la chaleur à l'échelle nanoscopique (interface, taille et matériau du champignon de contacte, etc.).

5.3.1 Caractérisation magnétique à travers l'AMR

Due à l'uniformité de l'aimantation et à l'homogénéité de la densité de courant, la dépendance en champ magnétique de l'AMR est directement lié au cycle d'hystérésis du nanofil de Ni. Une dépendance quadratique est observée [14] :

$$R(\theta) = R_0 + \Delta R_{AMR} \cos^2(\varphi) \quad (5.20)$$

La magnéto-résistance (fig. 5.3, échantillon A et échantillon B) est mesurée avec un champ magnétique extérieur appliqué à un angle θ donné par rapport à l'axe du nanofil. Le cycle d'hystérésis correspond bien à une rotation uniforme de l'aimantation avec une précision de l'ordre de 2% à 3% [42, 108, 100]. Les configurations magnétiques sont décrites par le profil bien connu du modèle de Stoner-Wohlfarth [80]. A des angles grands $\theta \simeq 90^\circ$, les états de l'aimantation suivent une rotation réversible à partir de l'axe du nanofil $\varphi = 0^\circ$ jusqu'à s'aligner presque avec le champ magnétique extérieur $\varphi \simeq \theta$ en augmentant l'intensité du champ magnétique de zéro au champ saturant (voir Fig. 5.2) : les états intermédiaires ($\varphi = [0, 90]$) sont stables et correspond au profil de la courbe d'AMR (Fig. 5.3). Au contraire, pour les petits angles (autour de $\theta \approx 10^\circ$) le profil de la magnéto-résistance en fonction du champ appliqué (Fig. 5.3) est plat car l'aimantation est coincé le long de l'axe du nanofil : il n'y a pas d'état stable entre $\varphi \simeq 10^\circ$ et $\varphi \simeq -10^\circ$. Il y a aucun changement fondamental de l'AMR si les nanofils de nickel (Ni) sont contactés avec du cuivre (Cu) ou de l'or (Au) au lieu de nickel (Ni).

5.3.2 MTEP est anisotropique

Un signal de MTEP est obtenu en mesurant la différence de tension à courant nul, en fonction du champ appliqué. Ce signal n'est pas directement généré par le champ magnétique mais il est relié aux configurations magnétiques : en effet la nature clairement anisotropique du MTEP est observée

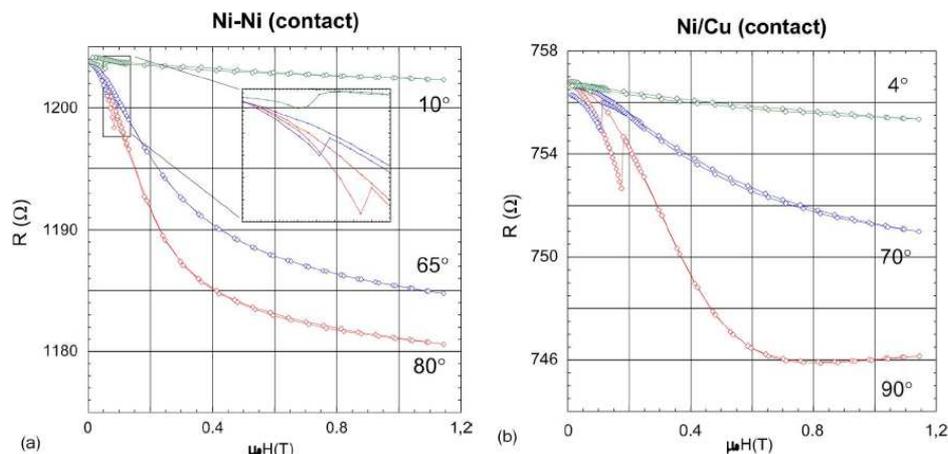


FIG. 5.3 – AMR mesuré aux différents angles du champ magnétique extérieur : (a) nanofil de Ni contacté avec du Ni (échantillon A) et (b) nanofil de Ni contacté avec du Cu (échantillon B).

sur la Fig. en mesurant la tension de TEP en fonction de l'angle du champ saturant appliqué (à champ saturant, l'aimantation s'aligne avec le champ : $\varphi \simeq \theta$). Le MTEP anisotropie, avec $\Delta V/V$ d'environ 13% (échantillon C), peut être comparé à l'AMR correspondante (1.3% d'amplitude, ajustée avec la loi $\cos^2(\theta + \epsilon)$, où ϵ prend compte le désalignement du nanofil dans la membrane [108]) dans Fig. 5.4. Le profil de MTEP n'est pas très régulier et varie légèrement d'un échantillon à l'autre, comme nous pouvons voir en comparant l'échantillon C (Fig. 5.4) et l'échantillon A (dans la Fig. 5.5 avec les points à $H = 1T$ pour différents angles). La variabilité de l'amplitude de MTEP d'un échantillon à l'autre n'est pas surprenant puisque les valeurs du gradient de température aux jonctions ne sont pas bien contrôlées à la taille nanoscopique dans notre expériences.

Le signal MTEP typique des nanofils de Ni contactés avec du Ni, mesuré en fonction du champ magnétique extérieur, est montré sur la figure 5.5 pour l'échantillon A caractérisé dans Fig. 5.3(a). Les points sont mesurés en diminuant et en augmentant le champ magnétique extérieur (i.e., c'est comme si on a mesuré un cycle d'hystérésis entier car l'aimantation est saturée dans la direction opposée avant chaque mesure), mais la partie hystérésis (observée dans l'AMR) n'est pas observée. La variation de $\Delta V/V$ est plus grande que celle du signal d'AMR (dépend de chaque échantillon, l'amplitude du MTEP varie dans la gamme entre $\Delta V/V = 3\%$ jusqu'à 30%) et est du même ordre de grandeur que celle du MTEP produite dans des dispositifs GMR composés de 150 bi-couches [95].

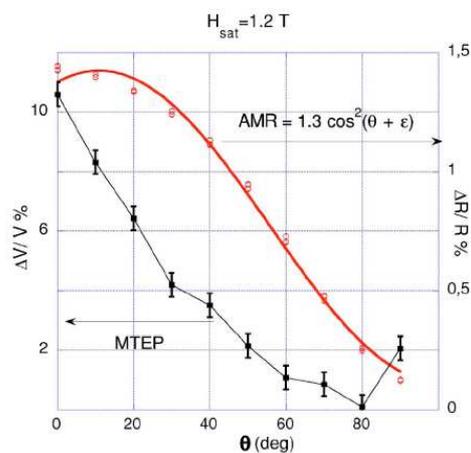


FIG. 5.4 – Comparaison entre le MTEP (gauche) et l'AMR (droit) pour un seul nanofil de Ni avec un contact Ni mesuré en fonction d'angle du champ magnétique extérieur avec le champ saturant ($\varphi = \theta$) de $1.2T$ (échantillon C).

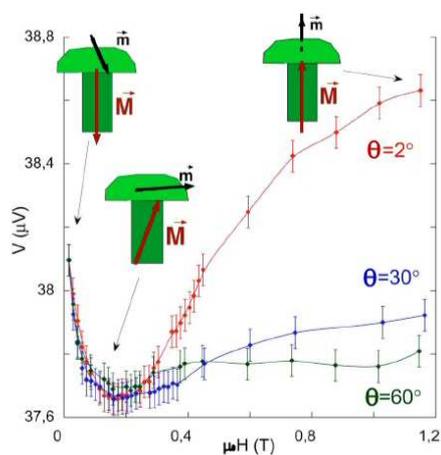


FIG. 5.5 – MTEP en fonction du champ magnétique extérieur pour un nanofil de Ni contacté avec du Ni pour différentes directions du champ extérieur. Les configurations magnétiques du contact Ni sont présentées avec les flèches pour $\theta = 2^\circ$ (échantillon A).

Ces résultats, observés systématiquement, sont très étonnants. En effet, la forme globale est surprenante en premier approche car le profil en fonction du champ extérieur \vec{H} à des petites valeurs de θ montre une variation maximale (tandis que l'aimantation est fixée le long de l'axe du nanofil et ne bouge donc pas), et inversement, le profil à des grandes valeurs de θ est à peu près plat (tandis que l'aimantation tourne de 0^0 à 90^0). C'est juste le contraire de ce qui est mesuré avec l'AMR. Le MTEP est minimum à des angles φ petits correspondants à la zone du *champ de "saut"* (voir Fig. 5.3) et le profil à champ fort montre une approche à la saturation correspondante au champ d'anisotropie du nanofil (i.e., dans la même gamme du champ appliqué). Ce profil va être analysé plus tard (section 5.3.4).

5.3.3 MTEP n'est pas un effet du massif

Le profil de MTEP n'est clairement pas une fonction de l'angle φ entre l'aimantation du nanofil de Ni et l'axe du nanofil, et donc les variations observées doivent être liées à un autre paramètre. L'hypothèse la plus probable est que les variations sont produites par les états d'une partie de l'aimantation confinée à l'interface près du contact de Ni. *Au contraire à l'AMR qui est un effet du massif, le MTEP paraît comme un processus hors-équilibre d'interface.*

Cette hypothèse peut facilement être vérifiée en comparant le signal MTEP des nanofils de Ni contactés avec du Ni avec celui des nanofils de Ni ; contactés avec Cu ou Au (voir Fig. 5.2). Dans ces derniers échantillons, l'interface ferromagnétique/normal se situe profondément dans le nanofil là où le courant électrique, le gradient de température, et l'aimantation sont homogènes. Le signal MTEP disparaît pour les nanofils avec contact Cu ou Au (c'est-à-dire le signal TEP mesuré en fonction de l'angle θ est constant). Les courbes mesurées en fonction du champ appliqué sont comparées dans la figure 5.6 (il s'agit de l'échantillon A et B, caractérisés dans la figure 5.3, et l'échantillon D), pour $\theta = 0^0$ et $\theta = 90^0$ pour l'échantillon B et D. Ces mesures confirment d'abord que l'effet est dû à l'interface et que le contact Ni joue un rôle essentiel pour l'observation des processus de MTEP. Il est important de noter qu'un rôle similaire du contact de Ni est observé dans des expériences de renversement de l'aimantation par l'injection de spin [42], où un renversement irréversible de l'aimantation provoqué par le courant injecté est observé avec des contacts ferromagnétiques, mais non pas avec les contacts de Cu.

Ces observations corroborent l'analyse faite dans la partie 5.2.2 où l'amplitude de l'effet est proportionnelle avec $\Sigma^{ne} \Delta T / AB$. Dans notre configuration expérimentale, nous nous attendons à ce que l'interface du bas joue un rôle mineur. Il est possible de supposer que le gradient de température local au

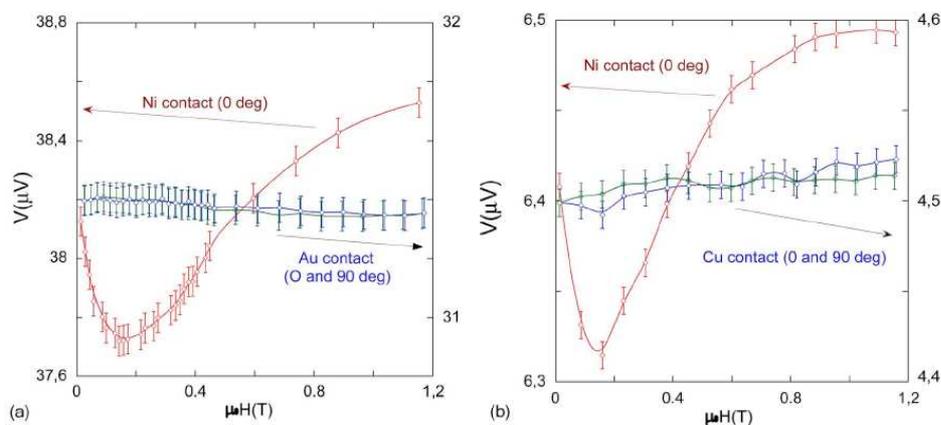


FIG. 5.6 – Comparaison entre MTEP pour un nanofil de Ni avec un contact Ni (mesuré avec $\theta \simeq 0^0$) et avec un contact Cu ou Au (mesuré avec $\theta \simeq 0^0$ et $\theta \simeq 90^0$)

niveau du contact avec la couche d'or domine le gradient de température dans tout le reste de la structure. Près du champignon de Ni, à l'interface de Ni/Au, le ratio $\Delta T/AB$ est grand. En revanche, dans le cas le contact du haut de Cu ou Au, la jonction ferromagnétique/normal est localisée profondément dans le nanofil où le gradient de température est probablement plus petit : le signal MTEP d'interface correspondant est donc petit.

5.3.4 MTEP est lié aux configurations magnétiques du contact

Dans la section précédente, nous avons montré que le MTEP est un effet d'interface. Le but de cette section est de montrer que le signal MTEP observé est généré par les configurations magnétiques du contact de Ni au-dessus de la membrane.

Il est tout à fait possible de relier le MTEP observé à la configuration magnétique du contact de Ni si nous considérons que l'angle en question est l'angle $\varphi_{N/F} = (\vec{I}_{N/F}, \vec{M}_{N/F})$ entre le courant local I et l'aimantation M à l'échelle nanoscopique près de l'interface N/F. Avec les contacts de Cu ou Au, le courant et la direction de l'aimantation sont tout les deux bien définis, et coïncide avec celui de l'AMR : $\varphi_{N/F} = (\vec{I}_{N/F}, \vec{M}_{N/F}) = \varphi$. Cependant, avec le contact de Ni, l'interface est localisé près du "champignon" de Ni. Les configurations magnétique du "champignon" ne suit pas celle dans le

nanofil qui est mesurée avec l'AMR (voir Fig. 5.5). Les variations de MTEP peuvent être reproduites en supposant que l'aimantation du "champignon" tourne avec le champ magnétique total $\vec{H}_T = \vec{H}_a + \vec{H} + \vec{H}_{perp}$, où \vec{H}_a est le champ dipolaire dû au nanofil (qui est de même ordre que l'anisotropie de forme du nanofil) et \vec{H} est le champ appliqué. Le champ \vec{H}_{perp} est le champ d'anisotropie du "champignon". Il est produit par le champ dipolaire du "champignon", qui probablement interagit avec les "champignons" voisins dans le plan de la membrane (il joue le rôle du champ d'anisotropie d'une couche mince). Donc, il faut distinguer les cas des angles grands et petits : (i) l'application du champ extérieur aux angles grands fixe l'aimantation de tous les champignons dans le plan perpendiculaire à l'axe du nanofil, alors que la configuration avec une aimantation du champignon qui s'aligne avec l'axe du nanofil est seulement attendue à champ extérieur faible où H_a domine ; (ii) dans le cas où le champ magnétique extérieur est appliqué aux angles petits $\theta \leq 10^0$ (voir schéma dans la Fig. 5.5), l'aimantation du champignon est alignée avec l'axe du nanofil pour petit champ autour de zéro et champ saturant (dominance de H). Pour les valeurs intermédiaires du champ, l'aimantation du fil est renversée dans la direction opposée : une paroi de domaine doit être présente entre le nanofil et le champignon. Le champ transversal \vec{H}_{perp} domine. Ce scénario décrit bien les courbes observées aux angles différents : le minimum correspond au MTEP avec l'aimantation du champignon perpendiculaire à l'axe du nanofil ; la valeur maximale de MTEP est obtenue quand l'aimantation du champignon est parallèle à l'axe du nanofil.

5.4 Conclusion

Le modèle de deux canaux de spin bien connu a été généralisé pour le cas d'une interface entre deux couches avec deux canaux de relaxation quelconque (en particulier $s - d$ pour les spins minoritaires). La magnétorésistance hors-équilibre provoquée par une interface est calculée dans le cas général. Une expression générale du pouvoir thermoélectrique est aussi déduite. Comme pour le cas de la magnétorésistance géante (GMR), une contribution de la résistance hors-équilibre associée à la magnétorésistance d'anisotropie (AMR) est prédite (Equ. 5.18) à l'interface ferromagnétique/normal due à la relaxation interbande $s - d$. Le pouvoir magnéto-thermoélectrique correspondant est calculé et proportionnel à $l_{diff}(\partial T/\partial z)_J$ où l_{diff} est la longueur de diffusion en question et $(\partial T/\partial z)_J$ est le gradient de température à la jonction (voir Fig. 5.1). Le MTEP associé avec la GMR est proportionnel à la magnétorésistance avec le coefficient de proportionnalité $\mathcal{P}_{GMR} = -(2a/S_t)(\beta'/\beta)$

et la MTEP associé à l'AMR est proportionnel avec l'AMR hors-équilibre, avec le coefficient de proportionnalité $\mathcal{P}_{AMR} = (2a/S_t)[\beta'/(\beta)]$. Dans le cas de GMR, la valeur expérimentale de \mathcal{P}_{GMR} est près de 1 [95] (le MTEP est du même ordre que la GMR) pour plusieurs jonctions en série.

En complément aux expériences avec des systèmes multicouches électro-déposé (Co/Cu/Co) [95], les mesures de MTEP des nanofils de Ni électro-déposé sont effectuées dans ce travail. Le résultat montre les trois points principaux : (i) un grand signal MTEP de l'ordre de quelques μV pour une variation de température environ de $1K$ (3–30% TEP), (ii) ce MTEP est anisotropique, et (iii) le signal MTEP mesuré est produit seulement par la configuration magnétique locale (à l'échelle nanoscopique) près de l'interface. Cependant, par rapport aux expériences de transport dans des systèmes GMR (où la magnétorésistance et le pouvoir magnéto-thermoélectrique sont mesurés), l'AMR hors-équilibre n'est pas accessible par les mesures à deux points avec le nanofils de Ni (le signal est caché par la contribution AMR). En conséquence, l'hypothèse d'une MTEP liée à la GMR (où $MTEP \propto l_{sf}\Delta T/AB$) et produit par l'inhomogénéité magnétique (i.e. effets de diffusion des parois de domaine DWS) ne peut être rejetée directement. Mais cette interprétation n'est pas réaliste car le signal des parois de domaine est très faible (au-dessous de 0.1%, si elle existe, d'après les études ultérieures [89]). Par conséquent, dans cette hypothèse, le signal MTEP observé ne pourrait être mesuré qu'avec un coefficient de proportionnalité très grand, de l'ordre de ≥ 100 , ce qui représente un écart de deux à trois ordre de grandeur par rapport au coefficient connu pour la GMR ($\mathcal{P}_{GMR} \simeq 1$ pour 150 jonctions).

Les résultats de cette étude montrent donc que la MTEP anisotropie observée à l'interface doit être produit par la relaxation interbande $s - d$ à l'interface (où $MTEP \propto l_{sf}\Delta T/AB$). L'amplitude de l'effet implique que la longueur de diffusion sd correspondante est de même ordre de la longueur spin-flip l_{sf} .

Ces résultats expérimentaux sont à mettre en parallèle avec les résultats obtenus sur les mêmes types d'échantillons lors des mesures de transfert de spin [42]. Avec cette étude, nous avons montré que le transfert de spin était considérablement plus faible sans le contact ferromagnétique au sommet (jamais avec l'interface à l'intérieur du fil, et un contact en Cu ou en Au).

Compte tenu des résultats obtenus ci-dessus avec le MTEP, nous pouvons déduire que le rôle de la relaxation $s - d$ (ou spin-orbite) est fondamental dans le mécanisme responsable du transfert de spin. Le chapitre suivant a pour objet de relier les deux types de mesures.

Chapitre 6

Susceptibilité thermique de la magnétorésistance

6.1 Introduction

Transfert de spin est le terme générique pour l'effet du renversement d'aimantation ou des excitations magnétiques produit par l'injection d'un courant polarisé en spin dans une nanostructure ferromagnétique. Depuis la découverte des effets de transfert de spin dans des différents type de systèmes [101, 22, 102, 23, 24, 103, 46, 104], une question fondamentale reste présente à propos de la nature stochastique ou déterministe de l'effet. Dès les tout premiers travaux pionniers sur le transfert de spin, les deux approches sont déjà proposées. Luc Berger [27] proposait une approche non- déterministe (stochastique donc) en calculant le temps de relaxation s-d moyen pour les électrons de conduction qui définit le transfert de spins du courant électrique au réseau ferromagnétique du métal " 3d " (dont une conséquence écrite dans l'article est de générer des ondes de spin). En d'autres termes l'accumulation correspondante $\Delta\mu$ est responsable de l'énergie $h\nu$ transmise aux ondes de spins $\Delta\mu = h\nu$. Cette même équation est utilisée par Tsoi et al. à Grenoble [21] pour rendre compte de la première mise en évidence expérimentale d'un effet de type transfert de spin (où le $\Delta\mu$ est cependant l'accumulation de spin lié à la GMR et non pas à la relaxation s-d). D'autre part, Slonczewski proposait un terme déterministe à ajouter dans l'équation dynamique de l'aimantation de Landau-Lifshitz-Gilbert [28] (ce terme est l'expression d'un torque exercé sur l'aimantation). Le terme déterministe n'est cependant pas trivial car, dans le cas de magnétisation homogène, deux champs effectifs (dérivés à partir de deux terme d'énergie potentielle) définit la dynamique [31, 105]. Les deux approches sont difficiles à distinguer car les termes

déterministes peuvent aussi justifier l'existence des excitations incohérentes, qui mène éventuellement au renversement d'aimantation.

Dans des années après cette découverte, beaucoup de différents aspects du transfert de spin ont été étudiés expérimentalement, surtout en termes du courant critique nécessaire afin de renverser l'aimantation (à une échelle de temps d'excitation donnée). Cependant, le point important est que la mesure du courant critique est une mesure de la relaxation magnétique, qui concerne donc un processus stochastique décrit par la loi d'activation de Néel-Brown [47]. En conséquence, le processus mesuré par le courant critique est stochastique quelque soit la nature du mécanisme en sous-jacent. Après dix ans de mesure du transfert de spin, il est toujours difficile de comprendre la vraie nature de ce processus magnétique. Soit le transfert de spin est décrit par une expression déterministe dans l'équation dynamique ferromagnétique, soit le transfert de spin est décrit par un terme de diffusion ou de fluctuations dans une équation stochastique correspondante. Autrement dit, est-ce que le transfert de spin produit une rotation cohérente ou une précession de l'aimantation, ou seulement des excitations incohérentes, ou les deux ? L'ambition de ce travail est de répondre à ces questions.

Il est important de remarquer que malgré une activité de recherche intense sur le sujet, les expériences les plus simples qui permettent d'accéder au transfert de spin en évitant les processus d'activation (il suffit de mesurer la rotation de l'aimantation due à l'injection de spin sur les états d'équilibres quasi-statiques), ne sont toujours pas publiées. Cette situation est plutôt surprenante car la mesure des modifications de la partie réversible du cycle d'hystérésis est aussi la façon la plus simple d'accéder aux termes déterministes prédit par le modèle de Slonczewski et de déterminer expérimentalement les potentiels correspondants.

Le problème des mesures quasi-statiques est dû à la difficulté de mesurer précisément les états de l'aimantation d'un seul monodomaine magnétique (contacté à une source de courant) en fonction de la densité du courant électrique, pour l'injection d'une forte densité de courant. En plus des difficultés de la mesure des états de l'aimantation à l'échelle nanoscopique, beaucoup d'effets d'origine thermodynamique perturbent la mesure. Le chauffage Joule est évidemment superposé à l'effet de l'injection de spin, mais aussi l'effet du champ magnétique induit ainsi que d'autres effets thermoélectriques importants [57, 58].

Dans ce chapitre, nous présentons un nouveau protocole expérimental qui permet d'étudier l'effet injection de spin sur des états quasi-statiques de l'aimantation, les résultats obtenus et une discussion sur les résultats en termes des fluctuations ferromagnétiques générées par le transfert de spin. Ceci est réalisé grâce aux propriétés thermodynamiques remarquables du ferroma-

gnétique. En analogie avec des effets magnétocalorique, on va montrer que la mesure de la susceptibilité thermique de la magnétorésistance d'anisotropie d'un mono-domaine ferromagnétique donne accès à la production d'entropie, et que cette méthode fournit une sonde sensible à des fluctuations ferromagnétiques générées par le transfert de spin. Il est intéressant de remarquer qu'une telle approche a été utilisée pour la première mise en évidence expérimentale de l'aimantation spontanée d'un matériau ferromagnétique avec la vérification de la théorie du champ moléculaire par P. Weiss en 1918 [106].

Le système utilisé pour cette étude est un seul nanofil de Ni contacté, obtenu par électrodéposition dans des membranes polycarbonate nanoporeuse. Il est choisi comme un système d'essai typique grâce à des nombreuses études précédentes sur les états magnétiques de l'aimantation [107, 100, 108, 109], sur le transfert de spin mesuré pour le saut irréversible de l'aimantation [22, 38, 39, 40, 41, 42], et sur le pouvoir thermoélectrique dépendant du spin présenté dans le chapitre précédent [52, 53, 54, 55, 20, 110]. Le nanofil peut être décrit comme un seul domaine magnétique avec deux interfaces ferromagnétique/normal (F/N). La rotation uniforme de l'aimantation est définie par un vecteur de module constant avec une trajectoire confinée sur la surface d'une sphère unité [31]; $\vec{M} = M_s \cdot \vec{u}_r$, où M_s est l'aimantation à saturation, et \vec{u}_r est le vecteur d'unité radiale. Au contraire des systèmes du type vanne de spin, la couche ferromagnétique est grande par rapport à la longueur de diffusion de spin (et aux autres longueurs de relaxation typique), i.e. grande par rapport aux interfaces. Ce système est relativement suffisamment simple pour pouvoir distinguer les effets du massif des effets de l'interface, qui est le tout premier pas de la compréhension des effets mesurés (voir la discussion du chapitre précédent). Le protocole décrit ici peut aussi s'appliquer sur un pilier typique des vannes de spin ou des jonctions tunnels, e.g. des unités de mémoire utilisé pour des applications *Magnetic Random Access Memory* (MRAM).

Pour un nanofil composé par une couche ferromagnétique uniforme, l'aimantation est mesurée à travers la magnétorésistance anisotropie (AMR). La magnétorésistance géante (GMR) ne peut pas être mesurée directement avec une seule couche magnétique car il n'y a pas d'état de référence pour la diffusion *spin-flip* [31]. Pourtant, l'accumulation de spin (responsable pour la GMR dans des structures vanne de spin) est présente aux interfaces entre le métal normal et le Ni (ferromagnétique) aux extrémités du nanofil [20], et le transfert de spin est clairement observé [22, 38, 39, 40, 41, 42]. Notons que le point clé du transfert de spin est la présence de l'accumulation de spin [25, 26]. En effet, le transfert de spin a été observé sur une seule couche ferromagnétique dans les nanofils homogènes et sur d'autres systèmes [43, 44, 45].

Le protocole expérimental adopté ici afin d'accéder à l'effet de transfert

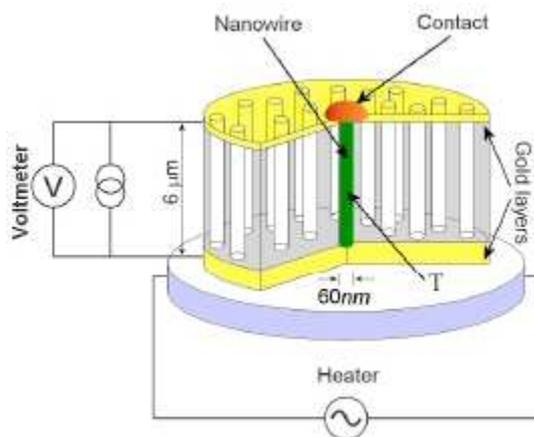


FIG. 6.1 – Schéma de la membrane avec le nanofil contacté et le chauffage résistif au-dessous.

de spin sur la partie réversible du cycle d'hystérésis repose sur la mesure de la susceptibilité thermique de l'aimantation $\chi_T = \frac{1}{M_s} \frac{\partial M}{\partial T}$ (où T est la température du nanofil et M_s est l'aimantation à saturation). Celle-ci est déduite la variation d'AMR avec la température. Ces mesures sont effectuées en fonction du champ magnétique extérieur, et en fonction de l'intensité du courant injecté. La susceptibilité thermique dépendant du champ permet d'obtenir la production d'entropie ferromagnétique, d'après la relation de Maxwell $(\frac{\partial S}{\partial H})_T = (\frac{\partial M}{\partial T})_H$. La validité de la relation de Maxwell est justifiée a priori parce que le système magnétique total est considéré (un système ferromagnétique similaire qui prend en compte le générateur de courant dépendant du spin et la couche ferromagnétique est défini dans les références[31, 32]), et que seulement la partie réversible du cycle d'hystérésis est prise en compte (voir [111], par exemple).

6.2 Mesure de la susceptibilité thermique

Afin de mesurer la susceptibilité thermique, un chauffage Joule (résistif) est fixé au-dessous de la membrane (voir Fig. 6.1). La membrane est donc composée d'un chauffage au-dessous avec une couche d'or de 250nm d'épaisseur, et un champignon submicrométrique de Ni qui forme le contact sur la surface de la deuxième couche d'or de $\sim 50nm$ d'épaisseur.

L'analyse des régimes de la conductivité de chaleur dans le nanofil [39, 40] montre que la température de la membrane n'est pas significativement

modifiée, et la chaleur propage de la couche d'or du bas à la couche d'or du haut de la membrane à travers le nanofil contacté.

Le protocole expérimental établi pour mesurer la susceptibilité thermique est le suivant : une variation sinusoïdale de la température du nanofil est imposée à l'aide du chauffage et la réponse de la tension (i.e. la magnéto-résistance) est mesurée en phase. Le chauffage est contrôlé par un courant alternatif (AC) de chauffage de fréquence f , $I_{chauff.} = I_{ch0} \cos(2\pi f)$. (voir chapitre 2 pour plus détails). La température du nanofil est mesurée précisément avec la résistance du nanofil lui-même. Typiquement, la résistivité est de l'ordre de $130 \cdot 10^{-9} \Omega m$ avec le coefficient de température $\alpha_m = 6.3 \cdot 10^{-3} K^{-1}$ (voir Tab. 4.1 au chapitre 4). La température est déduite à partir de l'équation 4.12. La variation de température correspondante du nanofil ΔT est à peu près $1K$ autour de la température ambiante $T_0 \approx 300K$ (voir Fig. 4.15). Au régime stationnaire, la température moyenne du nanofil suit le chauffage, donc oscille au cours du temps à la fréquence $2f$. Afin d'atteindre un régime stationnaire bien défini, la fréquence est fixée à $f = 0.05 Hz$. La durée de chaque mesure est fixée à $100s$. Comme le nanofil atteint l'équilibre thermique beaucoup plus vite [39, 40], chaque point de mesure est isothermique. Ce protocole est nécessaire afin d'extraire la réponse du système à l'excitation thermique, en excluant les autres contributions : *drifts*, instabilité thermique, électro-migration, etc. (surtout quand on injecte un courant de très grande densité, voir la prochaine section). Le gradient de température entre le haut et le bas de la membrane (i.e., entre les deux couches d'or) est environ $1K$, et bien contrôlé en mesurant le pouvoir thermoélectrique [20].

Il est important de noter que la température de la membrane est maintenue à une valeur constante (un peu plus grande que celle de l'ambiante) afin d'éviter l'effet magnétostriction dû à l'expansion thermique de la membrane polycarbonate. Pour cette raison, un thermostat extérieur (macroscopique) ne peut pas être utilisé dans ces expériences.

Pendant l'excitation thermique (température) alternative (AC), un courant direct (DC) est injecté dans le nanofil pour mesurer la magnéto-résistance. Le courant injecté dans la première étape d'étude est faible, typiquement de l'ordre de $20 \mu A$, (environ de $2 \cdot 10^5 A/cm^2$), et n'a aucun effet en termes du transfert de spin. Le potentiel mesuré en réponse à l'excitation thermique AC est sinusoïdal (voir l'encart de la Fig. 6.2). Le signal est analysé numériquement avec l'expression suivante :

$$V(t) = a0 + a1 \cos(2\pi ft + a2) + a3 \cos^2(2\pi ft + a4) \quad (6.1)$$

où :

- $a0$: $R_{AMR} = \frac{a0}{I}(H)$ est la magnéto-résistance.

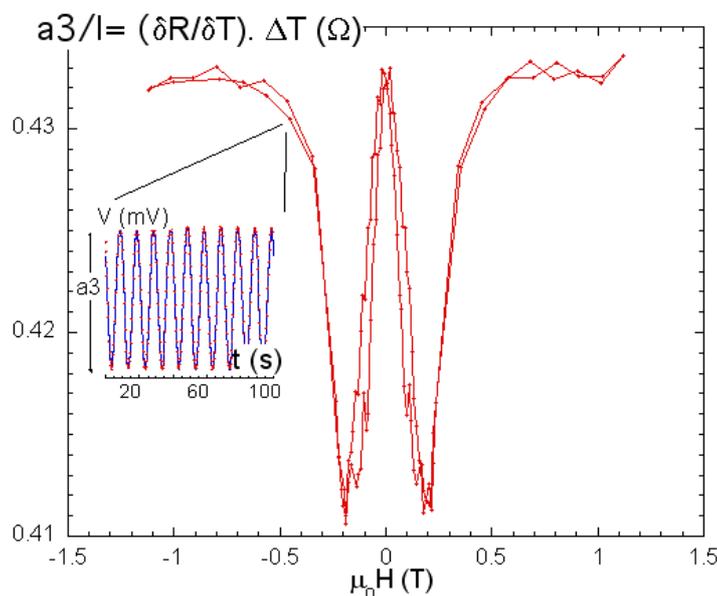


FIG. 6.2 – Susceptibilité thermique de la magnétorésistance en fonction du champ magnétique. L'angle du champ appliqué est environ 80° , la densité du courant est de 0.2 MA/cm^2 , et l'amplitude de la variation de température est $\Delta T \simeq 1\text{K}$ (autour de la température ambiante $T_0 = 300\text{K}$). Encart : réponse tension à la variation de température. Le paramètre $a3/I$ est déduit à partir de l'ajustement (ligne bleue).

- $a1$: correction due à l'induction produite par le chauffage.
- $a3 = \frac{\Delta V}{\Delta T} \cdot \Delta T$: l'amplitude de la réponse à l'excitation thermique, ou "susceptibilité thermique de la magnétorésistance" (ce term va être justifié au-dessous).
- $a2, a4$: corrections de phase.

L'ajustement correspondant est tracé dans l'encart à gauche de la Fig. 6.2. La contribution intéressante ici est la contribution dépendant du spin de ce signal qui est extraite à partir de l'ajustement (à travers le coefficient $a3$) et tracée en fonction du champ magnétique H (Fig. 6.2). Le profil obtenu est typique pour tous les échantillons mesurés (voir aussi les résultats et discussions dans les références [55, 114, 115]).

La figure 6.3 montre le profil du coefficient $a3/I(H)$ pour différentes valeurs d'angle du champ appliqué. Le signal est anisotropie donc cette contribution est clairement due à un effet massif. Les effets d'interface (comme celui mesuré avec le pouvoir thermoélectrique sur des échantillons équiva-

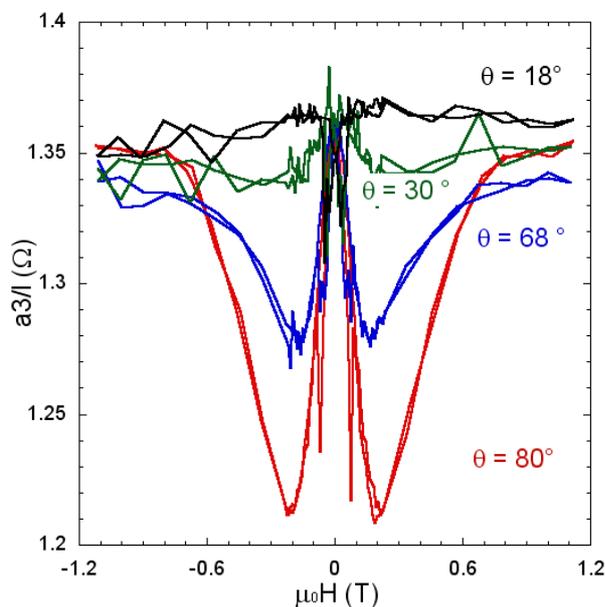


FIG. 6.3 – Susceptibilité thermique de la magnétorésistance en fonction du champ magnétique pour différents angles du champ appliqué.

lents [20]) ne sont pas observés avec des densités de courant petites. Le saut irréversible de l'aimantation, observé dans la courbe d'AMR (Fig. 4.9), est aussi remarqué dans le profil de $[a3/I](H)$. Cependant, dans le cadre de cette étude, nous focalisons sur la partie réversible du cycle d'hystérésis. Dans la partie suivante, l'angle du champ appliqué sera fixé à 80° car le signal est grand et le transfert de spin est maximal [22, 38, 41].

Comment pouvons-nous analyser ce signal? Dû au grand rapport d'aspect (proche de 100), la densité du courant est uniforme dans le nanofil. De ce point de vue, le fil métallique est unidimensionnel. En définissant l'axe du nanofil par la coordonnée z , les équations cinétiques sont (pour notre expérience galvanostatique, la densité de courant est constante).

$$\begin{cases} J_e = -\frac{\sigma}{|e|} \frac{\partial \mu}{\partial z} + S\sigma \frac{\partial T}{\partial z} \\ J_Q = -STJ_e - \kappa \frac{\partial T}{\partial z} \end{cases} \quad (6.2)$$

avec la charge électronique e et où μ est le potentiel électrochimique ($\frac{dV}{dz} = -\frac{1}{|e|} \frac{\partial \mu}{\partial z}$ est le champ électrique), J_e le courant électrique, et J_Q le courant de chaleur. Les coefficients de transport correspondants sont la conductivité σ et le coefficient de Fourier κ . Les coefficients croisés d'Onsager sont décrits

par les coefficients de Seebeck S (ou le coefficient Peltier TS). Utilisant la loi de Wiedemann-Franz $\kappa = \mathcal{L}_0 \sigma T$, nous introduisons la constante de Lorentz \mathcal{L}_0 . Eq. (6.2) réécrites :

$$\frac{\partial \mu}{\partial z} = -|e| \rho(H, T) \left(1 + \frac{S^2(T)}{\mathcal{L}_0} \right) J_e - \frac{|e| S(T)}{\mathcal{L}_0 T} \rho(H, T) J_Q \quad (6.3)$$

où la conductivité $\rho = 1/\sigma$, en fonction des états de l'aimantation M et de la température T , est introduite.

Le ratio $S^2/\mathcal{L}_0 \simeq 0.01$ est petit pour Ni et peut être négligé dans le premier terme de côté droit de l'équation 6.3. D'autre part, le deuxième terme de côté droit correspond à la tension lorsqu'il n'y a pas de courant passé à travers le nanofil et donc donne le pouvoir thermoélectrique (TEP). Ce terme est déjà étudié en détail dans la première partie de la thèse [20]. Il est donné ici par la tension mesurée à courant nul, i.e. par le terme $a3(I=0)$ d'après l'équation 6.1 (dans la suite, le coefficient $a3$ sera corrigé de l'effet thermoélectrique $a3(I) \leftarrow a3(I) - a3(I=0)$). Avec cette correction l'équation 6.3 simplement réduit la loi d'Ohm : $\frac{dV}{dz} = \rho(H, T) J_e$. En intégrant sur toute la longueur du nanofil l , on a :

$$V(H, T) = \rho(H, T) \frac{l}{A} I \quad (6.4)$$

où I est le courant circulant à travers la section A du nanofil. La validité de cette expression peut être vérifiée en mesurant le coefficient $a(I)$ en fonction du courant (voir Fig. 6.4). Le TEP, i.e. le coefficient $a3(I=0)$, est montré dans l'encart avec un agrandissement autour de $I=0$. A très grand I (qui est la région intéressante pour l'étude de transfert de spin) la déviation observée sur la figure 6.4 est principalement dû à l'effet Joule qui modifie la température de l'échantillon. La discussion concernant le transfert de spin sera dans la prochaine section.

Le coefficient $a3$ mesuré est défini par la variation thermique de la tension. En termes de résistance, on a :

$$\frac{a3}{I} = \frac{\partial R_{AMR}}{\partial T} \Delta T = \left(\frac{l \Delta T}{A} \right) \frac{\partial \rho}{\partial T} \quad (6.5)$$

Introduisant l'expression de l'AMR (voir Equ. 3.29)

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho(H, T)}{\partial T} &= \frac{\partial \rho_{\perp}(T)}{\partial T} + \frac{\partial \Delta \rho(T)}{\partial T} \left[\frac{M(H, T)}{M_s} \right]^2 \\ &+ 2 \Delta \rho(T) \left[\frac{M(H, T)}{M_s} \right] \underbrace{\frac{1}{M_s} \frac{\partial M}{\partial T}}_{\chi_T} \end{aligned} \quad (6.6)$$

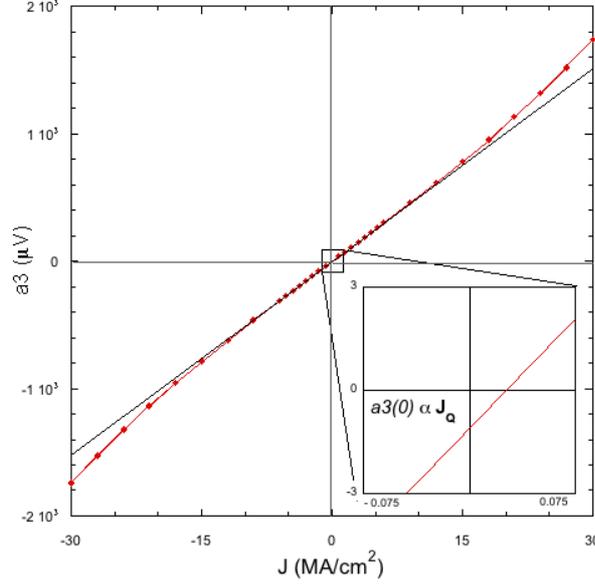


FIG. 6.4 – Susceptibilité thermique de la magnétorésistance en fonction du courant injecté dans le nanofil à $H = 0$. L’agrandissement autour de $I = 0$ montre la contribution du TEP.

où le dernier terme définit la susceptibilité thermique de l’aimantation $\chi_T = \frac{1}{M_s} \frac{\partial M}{\partial T}$.

Dans la gamme de température de l’expérience [290K , 310K], la variation de l’AMR en température est très petite, et le deuxième terme de côté droit est négligeable. Insérant l’équation 3.29, on obtient la susceptibilité thermique en fonction des paramètres mesurés :

$$\chi_T(H) = \frac{\partial \tilde{\rho}(H, T)}{\partial T} \frac{1}{2\Delta\rho(T)} \sqrt{\frac{\Delta\rho}{\tilde{\rho}(H, T)}} \quad (6.7)$$

où $\tilde{\rho}(H, T) = \rho(H, T) - \rho_{\perp}(T)$, et $\frac{\partial \rho}{\partial T}$ est indépendant du champ et constant dans la gamme de température de l’expérience. En conclusion, comme la variation de résistance en température et le cycle d’hystérésis de la magnétorésistance $\rho(H, T)$ sont connus, le protocole décrit ici permet de mesurer la susceptibilité thermique de la magnétorésistance d’un seul nanofil ferromagnétique.

Il faut remarquer que le profil de a_3 (Fig. 6.3) est similaire au profil du produit de la dérivée $\frac{\partial \rho}{\partial H}$ d’AMR et le champ magnétique H , i.e. la susceptibilité magnétique $\chi_H = \frac{1}{M_s} \frac{\partial M}{\partial H}$ multipliée par H . Ceci est dû à une propriété

générale d'un ferromagnét monodomaine : les deux susceptibilités sont proportionnelles aux fluctuations statiques. Dans notre cas, $M = M_s \langle \cos(\varphi) \rangle$ est la valeur moyenne à l'équilibre de l'aimantation uniforme (projeté sur l'axe du nanofil).

Nous avons $M = 2\pi M_s \int_0^\pi \cos(\varphi) e^{-V(H,\varphi)/kT} \sin\varphi d\varphi / Z$, où $Z(H, T)$ est la fonction de partition et $V(\vec{H}, \varphi)$ est composé par un terme anisotropie $K \sin^2(\varphi)$ et le terme Zeeman $-\vec{M} \cdot \vec{H}$ (Eq. (3.12)).

La susceptibilité thermique est écrite :

$$\begin{aligned} \chi_T = & -\frac{HM_s}{kT^2} (\langle \cos(\varphi) \cos(\theta - \varphi) \rangle - \langle \cos(\varphi) \rangle \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle) \\ & + \frac{K}{kT^2} (\langle \cos(\varphi) \sin^2(\varphi) \rangle - \langle \sin^2\varphi \rangle \langle \cos(\varphi) \rangle) \end{aligned} \quad (6.8)$$

D'autre part, la susceptibilité magnétique est écrite :

$$\chi_H = \frac{M_s}{kT} (\langle \cos(\varphi) \cos(\theta - \varphi) \rangle - \langle \cos(\varphi) \rangle \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle) \quad (6.9)$$

La relation suivante entre les deux susceptibilités est obtenue :

$$\chi_T = -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{kT^2} (\langle \cos^3\varphi \rangle - \langle \cos^2\varphi \rangle \langle \cos\varphi \rangle) \quad (6.10)$$

Il est donc possible de calculer la susceptibilité dépendant du champ à partir de l'équation 6.8 ou 6.10, et le potentiel à partir de l'équation 3.12. Le résultat des calculs numériques est montré sur la figure 6.5, avec les données expérimentales. La courbe est calculée sans aucun paramètre ajustable, avec l'anisotropie déduite à partir de la courbe d'AMR (Fig. 4.9). En conséquence, l'écart observé dans la figure 6.5 devrait être attribué à la limitation principale du modèle avec l'approximation d'aimantation uniforme (i.e. l'approximation *macrospin* qui suffit pour l'analyse de l'AMR). Autrement dit, la déviation par rapport à donnée expérimentale serait due à la non-uniformité. Comme les inhomogénéités magnétiques statiques correspondent à un maximum de quelques pour cent de l'aimantation totale, comme montré dans la section précédente, nous concluons que les ondes de spin jouent un rôle important dans la réponse thermique. Cette dernière remarque sera utile afin de comprendre l'effet d'injection d'un courant fort dans la section suivante.

6.3 Entropie magnétique et transfert de spin

Nous avons montré dans des études précédentes que l'effet de transfert de spin se produit dans ces échantillons en injectant un courant DC (ou une im-

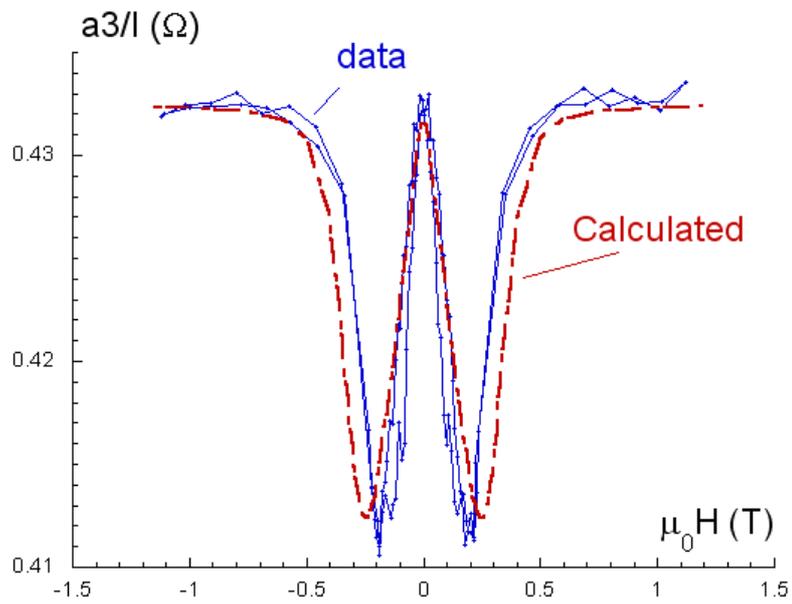


FIG. 6.5 – Comparaison entre le profil mesuré de $a3/I$ (data) et la susceptibilité thermique (ligne discontinue) calculée à partir de l'équation de fluctuations (6.10) (sans prendre en compte des ondes de spin)

pulsion de courant) avec une densité de l'ordre de $10^7 A/cm^2$ [38, 41, 42]. Le transfert de spin est observé par un déplacement du saut irréversible, i.e. une diminution du champ magnétique nécessaire pour provoquer un renversement irréversible de l'aimantation ; il est proportionnel au courant au-dessus d'un seuil donné de l'ordre de $10^7 A/cm^2$. Une diminution du champ de saut par un facteur jusqu'à 50% [42] a été observée. De plus, en termes des processus d'activation, la mesure après-effet (ou relaxation ferromagnétique) montre que l'injection de spin induit une modification importante des paramètres de la loi d'activation de Néel-Brown. La barrière de potentiel effectif - ou en terme stochastique l'inverse de la température effective - diminue linéairement en fonction de l'amplitude du courant. L'effet est très fort : 60% de variation est obtenu entre 1.5 et $4 \cdot 10^7 A/cm^2$ [39, 40]. Par contre, la partie réversible du cycle d'hystérésis n'est pas significativement modifiée (voir Fig. 6.6). Il faut noter que ces caractéristiques sont aussi observées dans des structures du type vanne de spin [47]. Ces observations donnent la motivation pour une interprétation d'un processus totalement stochastique généré par le couplage cinétique entre le spin des électrons de conduction et le paramètre d'ordre ferromagnétique (à travers les coefficients de transport d'Onsager) [32].

Dans ce contexte, la mesure d'entropie à l'équilibre (des états quasi-statiques) permet de quantifier la contribution des fluctuations ferromagnétique.

La figure 6.6 montre trois cycle d'hystérésis normalisé à R_{max} , avec les densités de courant $0.2 MA/cm^2$, $20 MA/cm^2$ et $40 MA/cm^2$) : les trois profils semblent s'être superposés sauf les positions du champ de saut (voir l'encart de la figure 6.6 et [38, 39, 40, 41, 42] pour l'étude du saut irréversible). Le signal correspondant à une rotation de l'aimantation, s'il existe, est trop petit pour être extrait à partir du bruit dans la figure 6.6.

D'ailleurs, la figure 6.7 montre que la susceptibilité thermique $a3/I(H)$ en fonction du champ magnétique est significativement modifiée par l'injection d'un courant fort. La figure 6.7(a) montre la dépendance en champ magnétique de la susceptibilité thermique aux différentes densités de courant. Dans la figure 6.7(b), la susceptibilité thermique de la magnétorésistance pour un courant faible (courant de référence $0.2 MA/cm^2$) et un courant fort ($45 MA/cm^2$) est superposée. Dans l'encart, la comparaison entre deux susceptibilités ferromagnétiques déduites à partir de l'équation (6.7).

D'après la relation de Maxwell (voir la discussion développée dans le contexte de l'effet magnétocalorique [116, 111, 117]), nous avons :

$$\delta S = \int_{-H_{sat}}^{H_{sat}} \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H dH \quad (6.11)$$

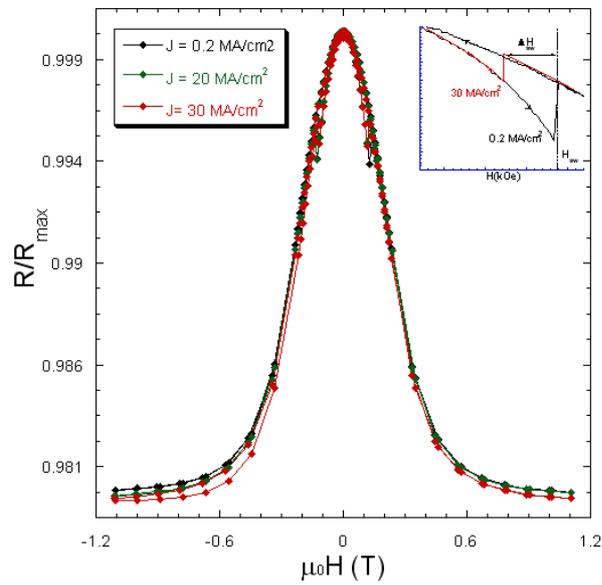


FIG. 6.6 – Comparaison entre le cycle d’hystérésis référence d’AMR et celui sous l’injection d’un courant fort. La partie réversible du cycle d’hystérésis n’est pas significativement affectée par le transfert de spin. Encart : l’agrandissement de la partie réversible avec deux champs de saut.

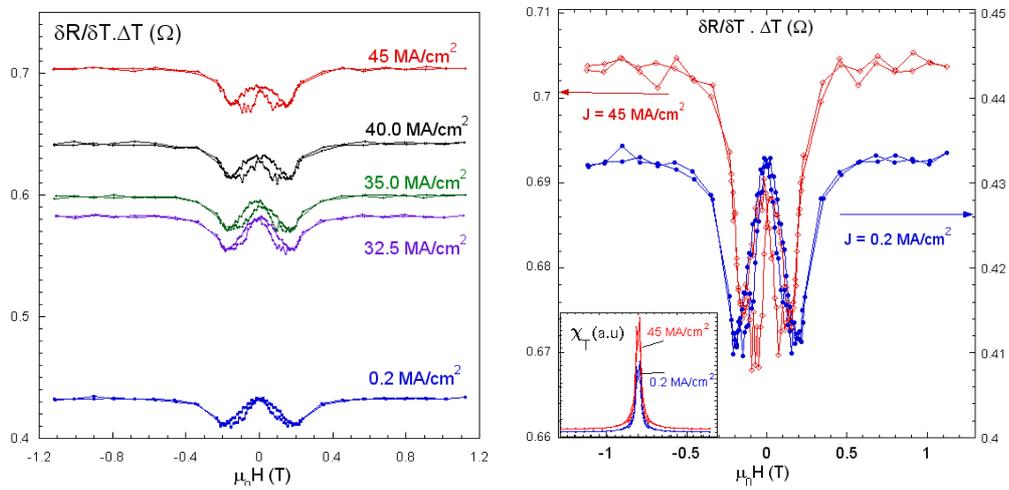


FIG. 6.7 – (a) Susceptibilité thermique de la magnétorésistance (coefficient a_3/I) en fonction du champ magnétique pour différentes densités de courant. (b) Comparaison entre les mesures avec courant de référence $J_0 = 0.2 MA/cm^2$ et avec courant fort $J = 45 MA/cm^2$. Encart : susceptibilités magnétique correspondantes (déduites à partir de l'équation 6.7 et de l'AMR mesurée).

et rappelons que le système ferromagnétique est à l'équilibre (seulement la partie réversible est étudiée), la variation d'entropie due à l'injection de spin forte peut être déduite à partir de la mesure de susceptibilité thermique, présentée dans la figure 6.7. Nous allons prendre comme référence pour l'entropie ferromagnétique l'intégral de la susceptibilité mesurée à 0.2 MA/cm^2 ($I_0 \approx 0,02 \text{ mA}$) pour les valeurs de champ magnétique dans l'intervalle $[-1T, +1T]$: $S_{ref} \simeq 8 \cdot 10^{-5} \text{ JK}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ (en prenant l'aimantation pour le Ni $M_s = 580 \cdot 10^{-3} \text{ J/Tcm}^3$ et la densité massive de Ni 8.9 g/cm^3).

L'entropie générée par l'injection de spin est définie à partir de la densité de courant de référence :

$$\Delta S_{ST}(J) = \int_{-H_{sat}}^{H_{sat}} \left(\frac{\partial M}{\partial T}(J) - \frac{\partial M}{\partial T}(J_0) \right) dH \quad (6.12)$$

La variation d'entropie $\Delta S/S_{ref}$ est tracé en fonction de la densité de courant injecté dans la figure 6.8. Le champ magnétique induit par le courant a été pris en compte dans la barre d'erreur de façon suivante : le champ induit (environ $\pm 5 \cdot 10^{-3} \text{ T/mA}$, voir la discussion dans [41]) est pris en compte avec un champ homogène $\pm 0.1T$ ajouté à l'intervalle d'intégral. La variation est linéaire avec le courant et atteint 60% à $4.5 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2$. Un courant seuil est clairement visible et est de l'ordre de $2 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2$. Toutes ces caractéristiques sont quantitativement et qualitativement mesurées pour l'expérience de transfert de spin dans les nanofils de Ni basée sur le processus d'activation sur le saut irréversible.

De plus, l'analyse des variations générées par l'injection de spin (Fig. 6.8(b)) montre que le transfert de spin déplace la position du minimum vers le zéro du champ. Cette modification du profil de la susceptibilité thermique ne peut pas reproduire avec l'équation 6.10 (avec les paramètres de relaxation K or M_s comme paramètres ajustable). La contribution principale du transfert de spin devrait donc être dû aux fluctuations reliées aux ondes de spin. L'identification d'une forme spécifique de ces fluctuations sera étudiée dans un autre travail (avec mesures hyperfréquence). Nous pouvons cependant déjà conclure que, avec la perspective que nous adoptons ici, l'effet de transfert de spin est d'augmenter le désordre, autrement dit, de détruire le paramètre d'ordre ferromagnétique, en analogie avec la transition de phase magnétique [116] qui se produit en approchant la température de Curie, ou dans le cas des transitions super-paramagnétiques en approchant de la température de blocage [117]. Dans le contexte de l'application à la mémoire à accès aléatoire (MRAMs), la remarque ci-dessus signifie que l'application d'un processus d'écriture basé sur le transfert de spin est, avec les principes physiques concernés (voir pour plus de détails [32]), très près de l'application

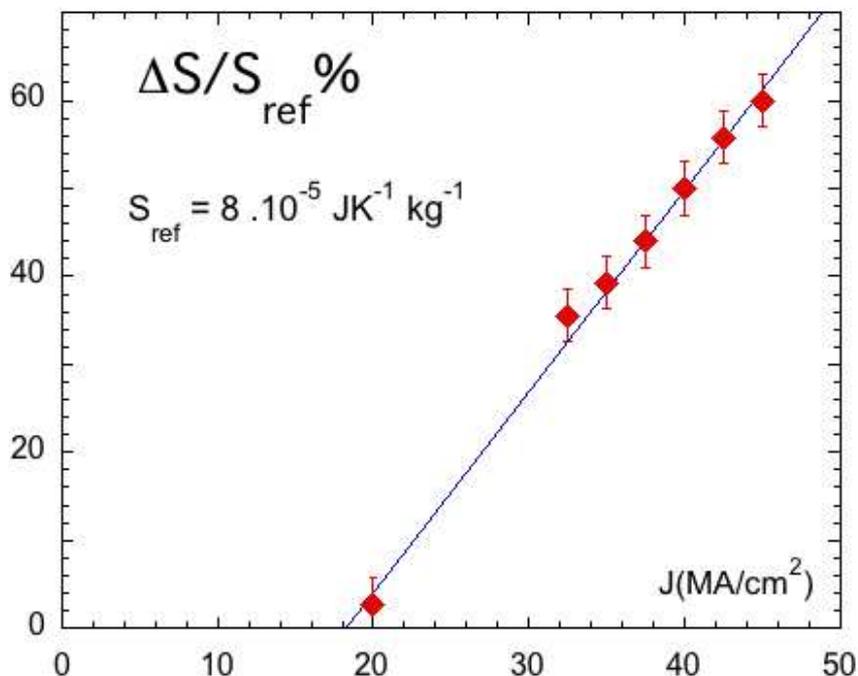


FIG. 6.8 – Contribution du transfert de spin à l'entropie ferromagnétique. L'entropie est calculée dans l'intervalle $\pm H_{\text{sat}} = \pm 1T$. La barre d'erreur prend compte le champ induit par le courant.

de renversement thermique sur les MRAMs (voir [118] pour une revue).

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit un protocole expérimental qui permet d'étudier l'effet de l'injection d'un courant DC de forte intensité sur les branches réversible du cycle d'hystérésis d'un nanofil magnétique. Ce protocole est basé sur la mesure de la susceptibilité thermique magnétique à travers les propriétés de la magnétorésistance et permet de déduire les fluctuations magnétiques et l'entropie générée par l'injection d'un courant de forte intensité.

Les résultats montrent une augmentation linéaire très grande de l'entropie ferromagnétique avec la densité du courant injecté : jusqu'à 60% à $J_e = 45 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2$. Un seuil de courant de $2 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2$ est aussi présent. Ces

caractéristiques sont exactement les mêmes que les résultats de l'étude sur la partie irréversible du cycle d'hystérésis avec un protocole expérimental basé sur le processus d'activation (i.e. barrière d'énergie effective, la mesure du courant critique à un champ magnétique donné, ou la mesure du déplacement du champ de saut en fonction du courant injecté). En conséquence, nous attribuons l'augmentation d'entropie mesurée en fonction du courant (Fig. 6.8) à l'effet de transfert de spin.

De plus, l'effet de l'injection de courant sur les états équilibres (quasi-statiques) de l'aimantation montre que le transfert de spin génère des fluctuations fortes de l'aimantation (ou des excitations incohérentes), au lieu d'une rotation de l'aimantation ou des ondes de spin cohérentes (comme ce qui résulte d'un torque magnétique extérieur). Malheureusement, avec cette étude, il n'est pas possible de répondre définitivement que le transfert de spin est complètement stochastique (terme de diffusion dans l'équation dynamique) ou si on peut le décrire par un terme déterministe dans l'équation dynamique. Cependant, dans le dernier cas, l'étude montre que le torque déterministique génère des fluctuations (des excitations incohérentes), et non pas une rotation cohérente ou une onde de spin cohérente.

Chapitre 7

Conclusion

Pour ce travail de thèse nous nous sommes fixé deux objectifs, qui ont été atteints en grande partie.

Le premier objectif concernait la question d'une éventuelle contribution d'une relaxation du type $s - d$ dans la magnétorésistance hors équilibre d'interface.

Les résultats des mesures de pouvoir thermoélectrique dépendant du spin (MTEP), mesures effectuées sur un nanofil homogène (une couche unique), montrent clairement un effet d'interface très important et anisotrope, du même ordre que celui généré par un nanofil composé de 150 bicouches Co/Cu. Ce signal est attribué à la composante spin orbite (ou $s - d$) de la magnétorésistance hors équilibre. Nous pouvons alors conclure à une contribution du type $s - d$ à l'accumulation de spin.

Quelles sont les conséquences physiques de ces observations? Si on accepte ce résultat, on doit donc admettre l'existence d'un processus de diffusion lié aux électrons de coeurs, c'est-à-dire lié au paramètre d'ordre ferromagnétique, qui ramène les différentes populations de spin des électrons de conduction à un état d'équilibre stationnaire ($\Delta\mu_{eq} = 0$) de part et d'autre d'une jonction. Dans le modèle simple présenté ici, cette relaxation de spin se superpose à la diffusion spin-flip habituelle de la magnétorésistance géante (le modèle à quatre canaux, avec les deux équations de diffusion couplées, n'a pas été présenté ici mais il est décrit dans la référence [31]). Il joue un rôle parfaitement analogue à l'accumulation de spin classique, avec un autre temps de relaxation (le temps de relaxation $s-d$), et une autre longueur de diffusion qui lui est associée. Lorsqu'on va décrire les transferts d'énergie, de charges électriques, et de moment magnétique de part et d'autre d'une jonction métal normal/ferromagnétique, on doit en toute rigueur rajouter un canal dissipatif $s-d$ (entre les spins des électrons de conduction et le paramètre ferromagnétique), au canal de relaxation habituel spin majoritaire

vers spin minoritaire (du "spin-flip scattering"). On doit de même ajouter une longueur caractéristique de diffusion, à ajouter au libre parcours moyen électronique, à la longueur de Debye de l'écrantage des charges électriques (relaxation des charges), et à la longueur de diffusion spin-flip.

Ce résultat trouve tout son intérêt dans le cadre des interprétations de l'effet de transfert de spin pour les raisons suivantes.

En effet, quelque soit la façon de le concevoir, le transfert de spin est avant tout la conséquence d'une interaction entre les spins des électrons de conduction et le paramètre d'ordre ferromagnétique. A partir de là, il y a plusieurs façons de décrire le régime stationnaire qui s'installe à une interface normal/ferromagnétique (ces différentes approches peuvent se révéler équivalentes en dernière analyse).

Pour interpréter le transfert de spin, on peut mettre en avant la non-conservation des moments ("torque") de spin des électrons de conduction à l'interface et, dans ce cas, l'interaction spin-orbite permet de supposer que ce moment est complètement transmis au paramètre d'ordre ferromagnétique (c'est le principe "action-réaction" de la mécanique), sans dissipation par ailleurs. Le terme de "torque" absorbé par l'interface se retrouve alors entièrement dans l'équation LLG de la dynamique de l'aimantation macroscopique. Les modèles focalisent alors sur les conditions aux limites en termes de coefficients de transmission et de réflexion dépendant du spin des électrons de conduction. Ce modèle est déterministe dans le sens où l'on ne considère pas les processus de diffusion intervenant par le biais des différents canaux dissipatifs, et il convient bien à une approche balistique du transport électronique. Toute la complexité des transferts d'énergie, de charges et de moments est réduite aux conditions aux limites à l'interface. On peut alors parler de "spin-transfer torque" ou STT.

Dans une autre interprétation (approche "diffusive spin-transfer"), celle adoptée ici, on va examiner l'ensemble des canaux dissipatifs par lesquels l'énergie, la charge et les moments de spin vont relaxer de part et d'autre de l'interface. Cela revient à décrire les processus de diffusion des spins des électrons de conduction (populations de spins mis hors équilibre par l'interface) qui vont intervenir dans les bilans de conservations de l'ensemble des grandeurs pertinentes. Dans cette approche, utilisée par ailleurs dans la description de la magnétorésistance géante, l'interaction entre les électrons de conduction et l'aimantation ferromagnétique (relaxation $s-d$) n'était pas détaillée non plus. Mais cette interaction est aussi à l'origine du transfert de spin. Le fait de mettre en évidence expérimentalement cette contribution est donc déterminant.

En montrant qu'il existe une contribution du type $s-d$ à l'accumulation de spin, nous faisons un pas en avant dans la validation du deuxième scénario.

Malheureusement, le lien direct entre cette contribution du type $s - d$ à la MTEP et le transfert de spin n'a pas été mis en évidence car les mesures de TEP se font à courant électrique nul.

Pour le deuxième objectif, nous avons cherché à réaliser ce lien direct entre les processus de diffusion de spin et le transfert de spin.

Comment mettre en évidence le fait que la diffusion de spin à l'interface serait directement responsable du transfert de spin ? Il y a eu plusieurs types d'expériences qui vont clairement dans ce sens (les mesures de bruit, en particulier des fluctuations à deux niveaux engendrées par le transfert de spin, et les mesures en géométries non locales sont des exemples significatifs). Nous avons cherché à mettre en évidence l'aspect non déterministe du transfert de spin sur les états d'équilibre quasi-statique de l'aimantation. Comme les mesures directes de bruit sont difficiles, en raison de l'échauffement Joule, des effets thermoélectriques, et de l'induction magnétiques, nous avons mesuré la susceptibilité thermique de l'aimantation sous injection de courant fort. Nous avons montré dans un premier temps que notre dispositif expérimental permettait effectivement de mesurer la susceptibilité en température et en champ magnétique de l'aimantation, et que les susceptibilités permettent de déduire les fluctuations de l'aimantation. Le résultat présenté dans le chapitre 6 montre clairement un effet très important (60%) du transfert de spin sur les fluctuations (ou sur la mesure d'entropie). Nous avons donc démontré que la conséquence du transfert de spin se mesure en termes de fluctuations de l'aimantation, c'est-à-dire en termes non-déterministes. Cependant, il est difficile d'aller plus loin dans les conclusions tant que l'on n'a pas plus d'information sur les excitations magnétiques (les ondes de spins) générées par le transfert de spin. En effet, on peut toujours arguer qu'un "torque" déterministe génère des excitations non cohérentes de l'aimantation qui sont mesurées dans un second temps sous forme de fluctuations.

Il semble que la difficulté de trancher entre action déterministe (STT) et non-déterministe (diffusive ST) du transfert de spin ne soit pas spécifique à un type d'expérimentations. Rien n'interdit en effet de conclure que les deux approches sont deux façons différentes de décrire une même chose.

Annexe A

Etats d'équilibre de l'aimantation

Les programme pour calculer les états équilibre de l'aimantation en utilisant le modèle de rotation uniforme de Stoner-Wohlfarth sont écrit avec le langage Java. J'ai choisi cette langage pour profiter sa portabilité sur plusieurs systèmes d'exploitation tels que Unix, Microsoft Windows, Mac OS ou Linux avec peu ou pas de modifications. Le résultat du calcul numérique est stocké sous format texte. Le résultat obtenu est présenté sur la figure [A.1](#).

A.1 En fonction du champ magnétique H

```
import java.io.*;

public class AMR_H {

    /*Parameters value*/
    //angle between applied field and wire's axis (in degree)
    static final int angle = 90;
    // convert "angle" to radian
    static final double theta = angle*Math.PI/180;
    // maximal value of h
    static final double h_max = 4;
    // number of sample point for phi
    static final double nb = 10000+1;
    // number of sample point for h
    static final double nb_H = 800+1;

    static double h;
    static double phi; //vary between [0,2*Pi]
```

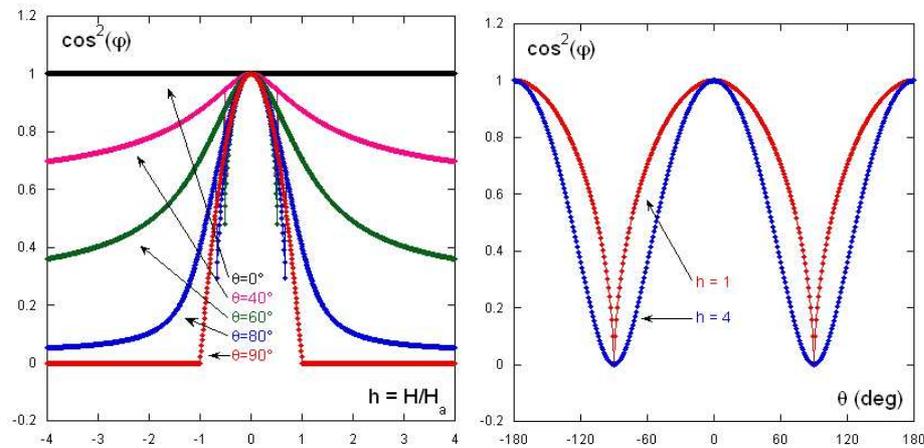


FIG. A.1 – Profil de $\Delta R/\Delta R_{max} = (R - R_{\perp})/(R_{//} - R_{\perp})$ en fonction de $h = H/H_a$ (à gauche) et en fonction de l'angle θ (à droite).

```

static String Data; //Data flow in text format
static String FileName = "Data_AMR(h)@"+angle+"deg.txt";

public static double Energy (double x){
return (Math.pow(Math.sin(x),2)-2*h*Math.cos(theta-x)+100);
}

public static double dEdPhi (double x){
return (Math.sin(2*x)-2*h*Math.sin(theta-x));
}

public static double d2EdPhi2 (double x){
return (Math.cos(2*x)+h*Math.cos(theta-x));
}

public static void main (String arg[]){

try{
FileOutputStream fos = new FileOutputStream(FileName);
DataOutputStream dos = new DataOutputStream(fos);

//write the column name in text file
dos.writeBytes("h"+"\\t"+"phi"+"\\t"+"theta"+"\\t"+"cos2(phi)"
+"\\t"+"cos(theta-phi)"+"\\n");

```

```
//for ramp up field
for (int i = 0; i < nb_H; ++i) {

h = -h_max + i*2*h_max/(nb_H-1);

phi = -1;

for(int j=0;j<nb;++j){

//finding local extremum
if(dEdPhi(j*2*Math.PI/(nb-1))*dEdPhi((j+1)*2*Math.PI/(nb-1))<0)
{

//finding local minumum
if(d2EdPhi2((j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1))>0){
//selection base on energy and previous magnetization state
if(phi<0){
phi=(j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1);
}
else{
if(h>0){
if(Energy((j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1))>Energy(phi)){
phi=(j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1);
}
}
}
else{
if(Energy((j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1))<Energy(phi)){
phi=(j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1);
}
}
}
}
}
}
}
}

System.out.println(phi);
Data=h+"\t"+phi+"\t"+angle+"\t"+Math.pow(Math.cos(phi),2)+"\t"
+Math.cos(theta-phi)+"\n";

dos.writeBytes(Data);
dos.flush();
```

```

}

//for ramp down field
for(int i=0;i<nb_H;++i){

h = h_max - i*2*h_max/(nb_H-1);

phi = -1;

for(int j=0;j<nb;++j){
if(dEdPhi(j*2*Math.PI/(nb-1))*dEdPhi((j+1)*2*Math.PI/(nb-1))<0)
{

if(d2EdPhi2((j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1))>0){
if(phi<0){
phi=(j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1);
}
else{
if(h<0){
if(Energy((j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1))>=Energy(phi)){
phi=(j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1);
}
}
else{
if(Energy((j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1))<=Energy(phi)){
phi=(j+0.5)*2*Math.PI/(nb-1);
}
}
}
}
}
}
}
}
System.out.println(phi);
Data=h+"\t"+phi+"\t"+angle+"\t"+Math.pow(Math.cos(phi),2)+"\t"
+Math.cos(theta-phi)+"\n";

dos.writeBytes(Data);
dos.flush();
}
dos.close();

```

```
} catch (IOException e) {  
e.printStackTrace();  
}  
}  
}
```

A.2 En fonction de l'angle θ

```
import java.io.*;  
  
public class AMR_theta {  
  
    /*Parameters value*/  
    //angle between applied field and wire's axis (in degree)  
    static double angle;  
    // convert "angle" to radian  
    static double theta; // = angle*Math.PI/180;  
    // maximal value of h  
    static final double h = 1;  
    // number of sample point for phi  
    static final double nb = 10000+1;  
    // number of sample point for theta  
    static final double nb_theta = 360+1;  
  
    static double phi; //vary between [0,2*Pi]  
    static String Data; //Data flow in text format  
    static String FileName = "Data_AMR(theta)@h="+h+".txt";  
  
    public static double Energy (double x){  
    return (Math.pow(Math.sin(x),2)-2*h*Math.cos(theta-x)+100);  
    }  
  
    public static double dEdPhi (double x){  
    return (Math.sin(2*x)-2*h*Math.sin(theta-x));  
    }  
  
    public static double d2EdPhi2 (double x){  
    return (Math.cos(2*x)+h*Math.cos(theta-x));  
    }  
}
```



```
}  
}  
System.out.println(phi);  
Data=angle+"\t"+phi+"\t"+h+"\t"+Math.pow(Math.cos(phi),2)+"\t"  
+Math.cos(theta-phi)+"\n";  
  
dos.writeBytes(Data);  
dos.flush();  
}  
  
dos.close();  
  
} catch (IOException e) {  
e.printStackTrace();  
}  
}  
}
```

Annexe B

Susceptibilités de l'aimantation

Avec l'approche statistique à température non nul, le composant de l'aimantation sur l'axe du nanofil est donné par :

$$M = M_s \langle \cos \varphi \rangle = M_s 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \sin \varphi d\varphi \quad (\text{B.1})$$

où : l'énergie du système $V(H, \varphi) = K \sin^2 \varphi - M_s H \cos(\theta - \varphi)$; la fonction partition $Z = Z(H, T) = 2\pi \int_0^\pi e^{-V(H,\varphi)/k_B T} \sin \varphi d\varphi$ qui ne dépend pas de φ

On calcule d'abord la dérivée partielle de Z par rapport à H :

$$\begin{aligned} \frac{\partial Z}{\partial H} &= 2\pi \int_0^\pi \frac{\partial}{\partial H} (e^{-V(H,\varphi)/k_B T}) \sin \varphi d\varphi \\ &= 2\pi \int_0^\pi \frac{M_s}{k_B T} \cos(\theta - \varphi) (e^{-V(H,\varphi)/k_B T}) \sin \varphi d\varphi \\ &= Z \frac{M_s}{k_B T} 2\pi \int_0^\pi \cos(\theta - \varphi) \frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \sin \varphi d\varphi \\ &= Z \frac{M_s}{k_B T} \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Puis la dérivée partielle de Z par rapport à T :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial Z}{\partial T} &= 2\pi \int_0^\pi \frac{\partial}{\partial T} (e^{-V(H,\varphi)/k_B T}) \sin \varphi d\varphi \\
&= 2\pi \int_0^\pi \frac{K \sin^2 \varphi - M_s H \cos(\theta - \varphi)}{k_B T^2} (e^{-V(H,\varphi)/k_B T}) \sin \varphi d\varphi \\
&= Z \frac{K}{k_B T^2} 2\pi \int_0^\pi \sin^2 \varphi \frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \sin \varphi d\varphi \\
&\quad - Z \frac{M_s H}{k_B T^2} 2\pi \int_0^\pi \cos(\theta - \varphi) \frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \sin \varphi d\varphi \\
&= Z \frac{K}{k_B T^2} \langle \sin^2 \varphi \rangle - Z \frac{M_s H}{k_B T^2} \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle \\
&= Z \left(\frac{K}{k_B T^2} \langle \sin^2 \varphi \rangle - \frac{M_s H}{k_B T^2} \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle \right)
\end{aligned} \tag{B.3}$$

Avec les dérivée de Z , on peut calculer ensuite la susceptibilité magnétique χ_H de l'aimantation :

$$\begin{aligned}
\chi_H &= \frac{1}{M_s} \frac{\partial M}{\partial H} = 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{\partial}{\partial H} \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&= 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{\partial}{\partial H} (e^{-V(H,\varphi)/k_B T}) \frac{1}{Z} \sin \varphi d\varphi \\
&\quad - 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{\partial Z}{\partial H} \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z^2} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&= \frac{M_s}{k_B T} 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \cos(\theta - \varphi) \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&\quad - \frac{1}{Z} \frac{\partial Z}{\partial H} 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&= \frac{M_s}{k_B T} (\langle \cos \varphi \cos(\theta - \varphi) \rangle - \langle \cos \varphi \rangle \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle)
\end{aligned} \tag{B.4}$$

De la même façon, on calcule la susceptibilité thermique χ_T de l'aiman-

tation :

$$\begin{aligned}
\chi_T &= \frac{1}{M_s} \frac{\partial M}{\partial T} = 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{\partial}{\partial T} \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&= 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{\partial}{\partial T} (e^{-V(H,\varphi)/k_B T}) \frac{1}{Z} \sin \varphi d\varphi \\
&\quad - 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \frac{\partial Z}{\partial T} \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z^2} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&= \frac{K}{k_B T^2} 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \sin^2 \varphi \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&\quad - \frac{M_s H}{k_B T^2} 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \cos(\theta - \varphi) \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&\quad - \frac{1}{Z} \frac{\partial Z}{\partial T} 2\pi \int_0^\pi \cos \varphi \left(\frac{e^{-V(H,\varphi)/k_B T}}{Z} \right) \sin \varphi d\varphi \\
&= \frac{K}{k_B T^2} \langle \cos \varphi \sin^2 \varphi \rangle - \frac{M_s H}{k_B T^2} \langle \cos \varphi \cos(\theta - \varphi) \rangle \\
&\quad - \left(\frac{K}{k_B T^2} \langle \sin^2 \varphi \rangle - \frac{M_s H}{k_B T^2} \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle \right) \langle \cos \varphi \rangle \\
&= -\frac{H}{T} \frac{M_s}{k_B T} (\langle \cos \varphi \cos(\theta - \varphi) \rangle - \langle \cos \varphi \rangle \langle \cos(\theta - \varphi) \rangle) \\
&\quad + \frac{K}{k_B T^2} \langle \cos \varphi \sin^2 \varphi \rangle - \frac{K}{k_B T^2} \langle \sin^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle \\
&= -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{k_B T^2} \langle \cos \varphi \sin^2 \varphi \rangle - \frac{K}{k_B T^2} \langle \sin^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle \\
&= -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{k_B T^2} (\langle \cos \varphi (1 - \cos^2 \varphi) \rangle - \langle 1 - \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle) \\
&= -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{k_B T^2} (\langle \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle - \langle \cos^3 \varphi \rangle)
\end{aligned} \tag{B.5}$$

A partir de l'équation B.4 pour χ_H et l'équation B.5 pour χ_T , on peut déduire la relation suivante entre les deux susceptibilités de l'aimantation :

$$\begin{aligned}
\chi_T &= -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{k_B T^2} \langle \cos \varphi \sin^2 \varphi \rangle - \frac{K}{k_B T^2} \langle \sin^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle \\
&= -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{k_B T^2} (\langle \cos \varphi (1 - \cos^2 \varphi) \rangle - \langle 1 - \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle) \\
&= -\frac{H}{T} \chi_H + \frac{K}{k_B T^2} (\langle \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle - \langle \cos^3 \varphi \rangle)
\end{aligned} \tag{B.6}$$

Cette équation permet de calculer la susceptibilité thermique χ_T et la comparer avec le résultat expérimental qu'on a obtenu. Dans l'équation B.6 ci-dessus, on peut déduire le premier terme à gauche $-(H/T)\chi_H$ à partir de la courbe d'AMR simulée avec le modèle Stonner-Wohlfarth (voir section 3.1.3). Il faut donc calculer le deuxième terme afin d'obtenir numériquement la susceptibilité thermique de l'aimantation χ_T . Il s'agit de calculer la valeur moyenne de $\langle \cos \varphi \rangle$, $\langle \cos^2 \varphi \rangle$ et $\langle \cos^3 \varphi \rangle$ en intégrant les intégrales correspondantes. Il est très difficile voire impossible de résoudre analytiquement ce problème. C'est pourquoi je décide de calculer numériquement ces valeurs. La forme de l'expression à intégrer est assez simple et ne pose aucun problème pour le calcul numérique. Par contre, comme l'énergie magnétique $V(H, \varphi)$ du système est très grand devant $k_B T$ (le rapport $V(H, \varphi)/k_B T \simeq 10^6$), l'exponentiel $e^{V(H, \varphi)/k_B T}$ est donc zéro car il est largement inférieur à la résolution d'ordinateur.

En travaillant avec M. Marc Hayoun, un théoricien au laboratoire, on a obtenu une solution empirique. Il s'agit de calculer $A = \langle \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle - \langle \cos^3 \varphi \rangle$ en remplaçant le rapport $V(H, \varphi)/k_B T$ dans chaque intégrale par $\alpha[(V(H, \varphi)/k_B T)/10^6]$. Pour chaque valeur du champ magnétique H , on calcule A pour $\alpha = 10^3$ et puis augment petit à petit jusqu'à la limite où on ne peut plus calculer A (i.e. la limite de l'ordinateur est atteinte). En traçant $A(\alpha)$ sur l'échelle *log-log*, on constate que la dépendance est linéaire, c'est-à-dire $\log A$ varie linéairement avec $\log \alpha$. On peut extrapoler pour $\alpha = 10^6$ (i.e. $\log \alpha = 6$) et donc obtenir la valeur de $\langle \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle - \langle \cos^3 \varphi \rangle$ pour une valeur de champ magnétique H donnée (voir la figure B.1). Le profil en fonction du champ magnétique est montré sur la figure 6.5 au chapitre 6.

Application numérique :

$$K = \frac{M_s H_a}{2} = (8.2278 \cdot 10^{-15} (J/T) \times 0.3 (T)) / 2 = 1.23417 \cdot 10^{-15} (J)$$

$$M_s = 8.2278 \cdot 10^{-15} (J/T), k = 1.38 \cdot 10^{-23} (J/K), T = 300 K$$

$$\frac{M_s}{kT} = 2.98108 \cdot 10^6$$

$$\frac{K}{kT^2} = 1.23417 \cdot 10^{-15} (J) / (1.38 \cdot 10^{-23} (J/K) \times 9 \cdot 10^4 (K^2)) = 9.93695 \cdot 10^2 (K^{-1})$$

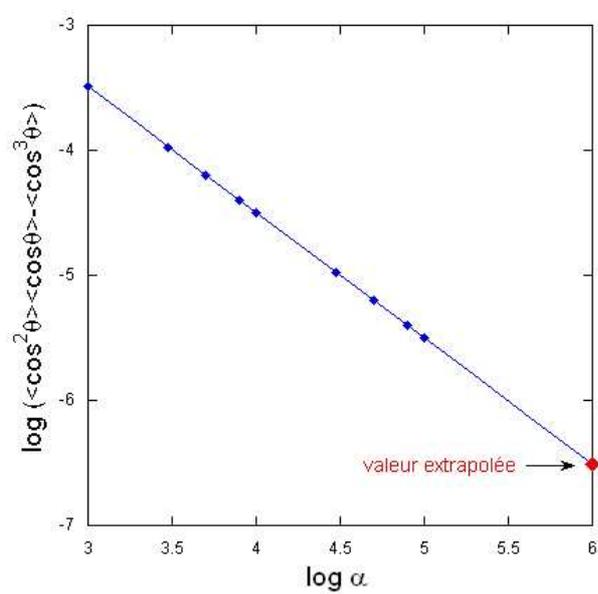


FIG. B.1 – Extrapolation pour obtenir la valeur de $\langle \cos^2 \varphi \rangle \langle \cos \varphi \rangle - \langle \cos^3 \varphi \rangle$ à une valeur de champ magnétique $\mu_0 H = 0.1 T$.

Bibliographie

- [1] N. F. Mott, *The Electrical Conductivity of Transition Metals*, Proc. Roy. Soc. London, Ser. A **153**, 699 (1936), *The Resistance and Thermoelectric Properties of the Transition Metals*, **156**, 368 (1936), et *Electrons in transition metals*, *Adv. Phys.* **13**, 325 (1964)
- [2] J. Smit, *Magnetoresistance of ferromagnetic metals and alloys at low temperatures*, *Physica* **17**, 612 (1951)
- [3] L. Colquitt Jr., H. R. Frankhauser, and F. J. Blatt, *Effect of Phonon- and Electron-Electron-Induced s-d Transitions on the Thermopower of the Transition Metals* *Phys. Rev. B* **4**, (1971)
- [4] J. Friedel, G. Leman, and S. Olszewski, *J. Appl. Phys.* **32**, 325S (1961)
- [5] M. B. Stearn, *On the Origin of Ferromagnetism and the Hyperfine Fields in Fe, Co, and Ni*, *Phys. Rev B* **8**, 4383 (1973)
- [6] A. Fert and I. A. Campbell, *Two-Current Conduction in Nickel*, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1190, (1968); A. Fert and I. A. Campbell, *J. Phys.* **32**, 46 (1971); A. Fert and Campbell, *Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys*, *J. Phys. F* **6**, 849 (1976)
- [7] Mark Johnson and R. H. Silsbee, *Interfacial charge-spin coupling : Injection and detection of spin magnetization in metals*, *Phys Rev. Lett.* **55**, 1790 (1985)
- [8] M. Johnson and R. H. Silsbee, *Thermodynamic analysis of interfacial transport and of the thermomagnetolectric system*, *Phys. Rev. B* **35**, 4959 (1987)
- [9] P. C. van Son, H. van Kempen, and P. Wyder, *Boundary resistance of the ferromagnetic-nonferromagnetic metal interface*, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2271 (1987)
- [10] T. Valet, A. Fert, *Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers*, *Phys. Rev. B* **48**, 7099 (1993)
- [11] S. Zhang and P. M. Levy, *Conductivity perpendicular to the plane of multilayered structures*, *J. Appl. Phys.* **69**, 4786 (1991)

- [12] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazlas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988)
- [13] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989)
- [14] T. R. McGuire, R. I. Potter, *Anisotropic magnetoresistance in ferromagnetic 3d alloys*, *IEEE Trans. Magn.* **11**, 1018 (1975)
- [15] J. Sakurai, M. Horie, S. Araki, H. Yamamoto, and T. Shinjo, *Magnetic field effects on thermopower of iron/chromium and copper/cobalt/copper/nickel-iron multilayers*, *J. Phys. Soc. Jpn* **60**, 2522 (1991)
- [16] L. Piraux, A. Fert, P. A. Schroeder, R. Loloee and P. Etienne, *Large magnetothermoelectric power in cobalt/copper, iron/copper, and iron/chromium multilayers*, *J. Magn. Magn. Mat.* **110**, L247 (1992)
- [17] J. Shi, R. C. Yu, S. S. P. Parkin, and M. B. Salamon, *Magnetothermopower of cobalt/copper multilayers*, *J. Appl. Phys.* **73**, 5524 (1993)
- [18] J. Shi, K. Pettit, E. Kita, SSP Parkin, R. Nakatani, and MB Salamon, *Field-dependent thermoelectric power and thermal conductivity in multilayered and granular giant magnetoresistive systems*, *Phys. Rev. B* **54**, 15273 (1996)
- [19] E. Yu. Tsymbal, D. G. Pettifor, Jing Shi, and M. B. Salamon, *Sign of thermoelectric power in Co/Cu and Fe/Cr multilayers*, *Phys. Rev. B* **59**, 8371 (1999)
- [20] J.-E. Wegrowe, Q. Anh Nguyen, M. Al-Barkki, J.-F. Dayen, T. L. Wade, H.-J. Drouhin, *Anisotropic magnetothermopower : Contribution of interband relaxation*, *Phys. Rev. B* **73**, 134422 (2006)
- [21] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W.-C. Chiang, M. Seck, V. Tsoi and P. Wyder, *Excitation of a Magnetic Multilayer by an Electric Current*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4281 (1998)
- [22] J.-E. Wegrowe, D. Kelly, Y. Jaccard, Ph. Guittienne and J.-Ph. Ansermet, *Current-induced magnetization reversal in magnetic nanowires*, *Europhysics Lett.* **45**, 626 (1999)
- [23] F. J. Albert, J. A. Katine, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, *Spin-polarized current switching of a Co thin film nanomagnet*, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3809 (2000)

- [24] J. Grollier, V. Cros, A. Hamzic, J. M. George, H. Jaffrès, A. Fert, G. Faini, J. Ben Youssef and H. Legall, *Spin-polarized current induced switching in Co/Cu/Co pillars*, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3663 (2001)
- [25] T. Kimura, Y. Otani and J. Hamrle, *Switching Magnetization of a Nanoscale Ferromagnetic Particle Using Nonlocal Spin Injection*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 037201 (2006)
- [26] S. Urazhdin, N. O. Birge, W. P. Pratt, Jr., and J. Bass, *Switching current versus magnetoresistance in magnetic multilayer nanopillars*, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1516 (2004)
- [27] L. Berger, *Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current*, *Phys. Rev. B* **54**, 9353, (1996)
- [28] J. C. Slonczewski, *Current-driven excitation of magnetic multilayers*, *J. Magn. Magn. Mat.* **159**, L1 (1996).
- [29] C. Heide, *Effects of spin accumulation in magnetic multilayers*, *Phys. Rev. B* **65**, 054401 (2001)
- [30] C. Heide, *Spin Currents in Magnetic Films*, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 197201 (2001)
- [31] J.-E. Wegrowe, M. C. Ciornei, H.-J. Drouhin, *Spin transfer in an open ferromagnetic layer : from negative damping to effective temperature*, *J. Phys. Condes. Mat.* **19**, 165213 (2007)
- [32] J.-E. Wegrowe, S. M. Santos, M.-C. Ciornei, H.-J. Drouhin, J. M. Rubí, *Magnetization reversal driven by spin injection : A diffusive spin-transfer effect*, *Phys. Rev. B* **77**, 174408 (2008)
- [33] J. Zhang, P. M. Levy, S. Zhang, and V. Antropov, *Identification of Transverse Spin Currents in Noncollinear Magnetic Structures*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 256602 (2004)
- [34] J. Zhang and P. M. Levy, *Layer by layer approach to transport in non-collinear magnetic structures*, *Phys. Rev. B* **71**, 184426 (2005)
- [35] V.K. Dugaev, J. Barnas, *Classical description of current-induced spin-transfer torque in multilayer structures*, *J. Appl. Phys.* **97**, 023902 (2005)
- [36] J. Barnas, A. Fert, M. Gmitra, I. Weymann and V. K. Dugaev, *Macroscopic description of spin transfer torque*, *Mat. Sci. Eng. B* **126**, 271 (2006)
- [37] N. L. Chung, Mansoor B. A. Jalil, S. G. Tan, J. Guo, and S. Bala Kumar, *A study of spin relaxation on spin transfer switching of a noncollinear magnetic multilayer structure*, *J. Appl. Phys.* **104**, 084502 (2006)

- [38] J.-E. Wegrowe, D. Kelly, T. Truong, Ph. Guittienne, J.-Ph. Ansermet, *Magnetization reversal triggered by spin polarized current in magnetic nanowires*, *Europhysics Lett.* **56**, 748 (2001)
- [39] Ph. Guittienne, J.-E. Wegrowe, D. Kelly, J.-Ph. Ansermet, *Switching Time Measurements of current induced Magnetization Reversal*, *IEEE Trans. Mag. Magn.* **37**, 2126 (2001)
- [40] Ph. Guittienne, L. Gravier, J.-E. Wegrowe, and J.-Ph. Ansermet, *Real time probing of magnetization switching in magnetic nanostructures*, *J. Appl. Phys.* **92**, 2743 (2002)
- [41] D. Kelly, Jean-Eric Wegrowe, Trong-kha Truong, Xavier Hoffer, and Jean-Philippe Ansermet, *Spin-polarized current-induced magnetization reversal in single nanowires*, *Phys. Rev. B* **68**, 134425 (2003)
- [42] J.-E. Wegrowe, M. Dubey, T. Wade, H.-J. Drouhin, and M. Konczykowski, *Spin transfer by spin injection between both interfaces of a Ni nanowire*, *J. Appl. Phys.* **96**, 4490 (2004)
- [43] Y. Ji, C. L. Chien, and M. D. Stiles, *Current-induced spin-wave excitations in a single ferromagnetic layer*, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 106601 (2003)
- [44] T. Y. Chen, Y. Ji, C. L. Chien, and M. D. Stiles, *Current-driven switching in a single exchange-biased ferromagnetic layer*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 026601 (2004).
- [45] B. Özyilmaz, A. D. Kent, J. Z. Sun, M. J. Rooks, and R. H. Koch, *Current-induced excitations in single cobalt ferromagnetic layer nanopillars.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 176604 (2004)
- [46] J.-E. Wegrowe, A. Fábíán, Ph. Guittienne, X. Hoffer, D. Kelly, and J.-Ph. Ansermet and E. Olive, *Exchange torque and spin transfer between spin polarized current and ferromagnetic layers*, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 3775 (2002)
- [47] J.-E. Wegrowe, *Magnetization reversal and two-level fluctuations by spin injection in a ferromagnetic metallic layer*, *Phys. Rev. B* **68**, 214414 (2003)
- [48] A. Fábíán, C. Terrier, S. Serrano Guisan, X. Hoffer, M. Dubey, L. Gravier, and J.-Ph. Ansermet and J.-E. Wegrowe, *Current-Induced Two-Level Fluctuations in Pseudo-Spin-Valve (Co/Cu/Co) Nanostructures*, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 257209 (2003)
- [49] T. Blon, M. Mátéfi-Tempfli, S. Mátéfi-Tempfli, L. Piraux, S. Fusil, R. Guillemet, K. Bouzehouane, C. Deranlot, and V. Cros, *Spin momentum transfer effects observed in electrodeposited Co/Cu/Co nanowires*, *J. Appl. Phys.* **102**, 103906 (2007)

- [50] J.-E. Wegrowe, A. Comment, Y. Jaccard, J.-Ph. Ansermet, N. M. Dempsey and J.-P. Nozières, *Spin-dependent scattering of a domain wall of controlled size*, *Phys. Rev. B* **18**, 12216 (2000)
- [51] M. Viret, D. Vignoles, D. Cole, J. M. D. Coey, W. Allen, D. S. Daniel, and J. F. Gregg, *Spin scattering in ferromagnetic thin films*, *Phys. Rev. B* **53**, 8464 (1996)
- [52] L. Gravier, A. Fábíán, A. Rudolf, A. Cachin, J.-E. Wegrowe, and J.-Ph. Ansermet, *Spin-dependent thermopower in Co/Cu multilayer nanowires*, *J. Magn. Magn. Mat.* **271**, 153 (2004)
- [53] L. Gravier, S. Serrano-Guisan and J.-Ph. Ansermet, *Spin-dependent Peltier effect in Co/Cu multilayer nanowires.*, *J. Appl. Phys.* **97**, 10C501 (2005)
- [54] L. Gravier, S. Serrano-Guisan, F. Reuse and J.-Ph. Ansermet, *Thermodynamic description of heat and spin transport in magnetic nanostructures*, *Phys. Rev. B* **73**, 052410 (2006)
- [55] S. Serrano-Guisan, L. Gravier, M. Abid and J.-Ph. Ansermet, *Thermoelectrical study of ferromagnetic nanowire structures*, *J. Appl. Phys.* **99**, 08T108 (2006)
- [56] Serrano-Guisan, S. Di Domenicantonio, G. Abid, M. Abid, J. P. Hillenkamp, M. Gravier, L. Ansermet, J. P. Felix, C., *Origin of the magnetothermogalvanic voltage in cluster-assembled metallic nanostructures*, *Nature Materials* **7**, 258 (2008)
- [57] A. Fukushima, H. Kubota, A. Yamamoto, Y. Suzuki, S. Yuasa, *Peltier effect in metallic junctions with CPP structure*, *IEEE Trans. Mag.* **41**, 2571 (2005)
- [58] A. Fukushima, H. Kubota, A. Yamamoto, Y. Suzuki, and S. Yuasa, *Peltier cooling in current-perpendicular-to-plane metallic junctions*, *J. Appl. Phys.* **99**, 08H706 (2006)
- [59] A. Rebei, W. N. G. Hitchon, and G. J. Parker, *s-d-type exchange interaction in inhomogeneous ferromagnets*, *Phys. Rev. B* **72**, 064408 (2005)
- [60] P. M. Haney, D. Waldron, R. A. Duine, A. S. Nunez, H. Guo, and A. H. MacDonald, *Current-induced order parameter dynamics : Microscopic theory applied to Co/Cu/Co spin valves*, *Phys. Rev. B* **76**, 024404 (2007)
- [61] P. M. Haney, R. A. Duine, A. S. Nunez, H. Guo, and A. H. MacDonald, *Current-induced torques in magnetic metals : Beyond spin-transfer*, *J. Mag. Magn. Mat.* **320**, 13000 (2008)
- [62] T. L. Wade and J.-E. Wegrowe, *Template synthesis of nanomaterials*, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **29**, 3-22 (2005)

- [63] Poretics Corp., 111 Lindbergh Ave., Livermore, CA 94550-9520.
- [64] G. Prentice, G. Dryhurst, *Encycl. of Phys. Sciences and Tech., Vol. 4 Acad. Press* (1987)
- [65] D.T. Sawyer, A. Sobkowiak, J. Roberts, *Electrochemistry for chemists*, Wiley (1995)
- [66] G. Bacquias, *Pratice et conduite des bain d'électrolyse, Librairie de Traitements des Surfaces*, Paris, (1984).
- [67] J.W. Dini, *Electrodeposition, Micromagnetics*, Wiley 1995.
- [68] S.N. Srimathi, S.M. Mayana, S. Sheshradi, *Electrodeposition of Binary Magnetic Alloys, Surf. Tech.* **16**, 277, (1982).
- [69] J.M. Brownlow, *Electrodeposition of Thin Magnetic Films in the Ni-Fe-Cu System, J. Appl. Phys.* **38**, 1440 (1967).
- [70] J. Meier, PhD thesis, EPFL 1997, Switzerland.
- [71] M. Moscovits, B. Schmidhalter, Inter. Patent No PCT/GB87/00692, 07.04.1988
- [72] R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, *Nuclear tracks in solids*, Univ. of Cal. Press Berkeley (1975)
- [73] C.R. Martin, *Nanomaterials : A Membrane-Based Synthetic Approach, Science* **266**, 1961 (1994)
- [74] I. Chlebny, B. Doudin, J.-Ph. Ansermet, *Pore size distributions of nanoporous track-etched membranes, Nanostruc. Mater.* **2**, 637 (1998)
- [75] Emitech Ltd, South Stour Avenue, Ashford, Kent. TN23 7RS
- [76] HEKA Elektronik, Wiesenstrasse 71, D-67466 Lambrecht/Pfalz, Germany
- [77] G. S. M. Rijks, T. Coehoorn, M. J. M. de Jong, W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. B* **51**, 283 (1995)
- [78] D. J. Craik, *Magnetism : Principles and applications, Micromagnetics*, Wiley (1995)
- [79] <http://www.keithley.com>
- [80] A. Aharoni, *Introduction to the theory of ferromagnetisme*, Oxford University Press, ISBN13 : 978-0-19-850809-0, ISBN10 : 0-19-850809-3
- [81] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, Dunod Université, ISBN 2-04-010611-1
- [82] A. Blondel, J.-P. Meier, B. Doudin, J.-Ph Ansermet, *Giant magnetoresistance of nanowires of multilayers, Appl. Phys. Lett.* **65**, 3019 (1994)
- [83] *Formulaires et Tables*, Ed. du Tricorne, Genève (1985)

- [84] Handbook of chemistry and physics, CRC Press, Cleveland, Ohio, US
- [85] J. Bass, Metals, *Electronic Transport Phenomena*, Landolt-Bornstein, New Series, Group 3, Springer Verlag (1982)
- [86] J.-E. Wegrowe, *Thermokinetic approach of the generalized Landau-Lifshitz-Gilbert equation with spin-polarized current*, *Phys. Rev. B* **62**; 1067 (2000)
- [87] M. Johnson and R. H. Silsbee, *Coupling of electronic charge and spin at a ferromagnetic-paramagnetic metal interface*, *Phys. Rev. B* **35**, 4959 (1987); **37**, 5312 (1988)
- [88] P. M. Levy, H. E. Camblong, and S. Zhang, *Effective internal fields and magnetization buildup for magnetotransport in magnetic multilayered structures*, *J. Appl. Phys.* **75**, 7076 (1994)
- [89] J.-E. Wegrowe, A. Comment, Y. Jaccard, J.-Ph. Ansermet, N. M. Dempsey, and J.-Ph. Nozière, *Phys. Rev. B* **67**, 012410 (2003)
- [90] N. F. Mott and H. Jones, *Theory of the Properties of Metal and Alloys* (Oxford University Press, New York, 1953)
- [91] R. Potter, *Magnetoresistance anisotropy in ferromagnetic NiCu alloys*, *Phys. Rev. B* **10**, 4626 (1974)
- [92] J. E. Wegrowe and H.-J. Drouhin, Proc, SPIE **5732**, 498 (2005); cond-mat/0408410 (unpublished)
- [93] F. J. Jedema, A. T. Filip, and B. J. van Wees, *Nature (London)* **410**, 345 (2001)
- [94] J.-M. George, A. Fert, and G. Faini, *Phys. Rev. B* **67**, 012410 (2003)
- [95] L. Gravier, J.-E. Wegrowe, T. Wade, A. Fabian, and J.-Ph. Ansermet, *Thermopower and GMR of a single Co-Cu multilayer nanowire*, *IEEE Trans. Magn.* **38**, 2700 (2002)
- [96] J.-E. Wegrowe, S. E. Gilbert, V. Scarani, D. Kelly, B. Doudin, and J.-Ph. Ansermet, *Anisotropic magnetoresistance as a probe of magnetization reversal in individual nano-sized nickel wires*, *IEEE Trans. Magn.* **34**, 903 (1998)
- [97] C. Schoenenberger, B. M. I. van der Zande, L. G. J. Fokkink, M. Henny, M. Kreuger, A. Bachtold, R. Huber, H. Birk, U. Staufer, and C. Schmid, *J. Phys. Chem. B* **101**, 5497 (1997)
- [98] J. Hamrle, T. Kimura, T. Yang, and Y. Otani, *Phys. Rev. B* **71**, 094434 (2005)
- [99] Ch. Marrows, *Adv. Phys.* **54**, 585 (2005)

- [100] J.-E. Wegrowe, D. Kelly, A. Frank, S. E. Gilbert, and J.-Ph. Ansermet, *Magnetoresistance of Ferromagnetic Nanowires*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3681 (1999)
- [101] J. Z. Sun, *J. Magn. Magn. Mat.* "*Current-driven magnetic switching in manganite trilayer junctions*", **202**, 157 (1998), M. Tsoi et al. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4281 (1998).
- [102] E.B. Myers, D.C. Ralph, J.A. Katine, R.N. Louie, R.A. Buhrman, "*Current-induced switching of domains in magnetic multilayer devices*", *Science* **285**, 867 (1999).
- [103] J. Z. Sun, D. J. Monsma, D. W. Abraham, M. J. Rooks and R. H. Koch, "*Batch-fabricated spin-injection magnetic switches*", *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2202 (2002).
- [104] S. Urazhdin, O. Norman, W. Birge, W. P. Pratt, and J. Bass *APL*, "*Current-driven magnetic excitations in Permalloy-based multilayer nanopyllars*", *Phys. Rev. Lett.* **92**, 146803 (2003).
- [105] C. Serpico, I. D. Mayergoyz, G. Bertotti, M. D'Aquino, R. Bonin, "*Current induced magnetization dynamics in nanomagnets*", *Physica B* **403**, 282 (2008).
- [106] P. Weiss, A. Piccard, "Sur un nouveau phénomène magnétocalorique", *C. R. Acad. Sci. (Paris)* **166**, 352 (1918), P. Weiss, R. Forrer, "Sur le phénomène magnétocalorique et la chaleur spécifique du nickel", *C. R. Acad. Sci.*, **178** 1347 (1924).
- [107] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, B. Doudin, J. Meier J, J.-Ph. Ansermet, D. Mailly "*Measurements of magnetization switching in individual nickel nanowires*", *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1873 (1996).
- [108] Y. Jaccard, Ph. Guittienne, D. Kelly, J.-E. Wegrowe, J-Ph. Ansermet, *Uniform magnetization rotation in single ferromagnetic nanowires*, *Phys. Rev. B* **62**, 1141 (2000).
- [109] A. Fert, L. Piraux "*Magnetic nanowires*", *J. Magn. Magn. Mat.* **200** 338 (1999).
- [110] E. Shapira, A. Tsukernik, and Y. Selzer, "*Thermopower measurements on individual 30 nm nickel nanowires*" *Nanotechnology* **18**, 485703 (2007).
- [111] V. Basso, G. Bertotti, M. LoBue, C.P. Sasso, "*theoretical approach to the magnetocaloric effect with hysteresis*", *J. Magn. Magn. Mat.* **290** (2005) 651, and "*Entropy and entropy production in magnetic systems with hysteresis*", *J. Appl. Phys.* **97**, 10E513 (2005).

- [112] J. -E. Wegrowe, S. Gilbert, D. Kelly, B. Doudin J.-Ph. Ansermet, *Anisotropic magnetoresistance as a probe of magnetization reversal in individual nano-sized nickel wires*, IEEE Trans. Magn. **MAG.- 34**, 903 (1998).
- [113] W. F. Brown Jr., *"Micromagnetics"*, Interscience Publishers, 1963.
- [114] S. Serrano-Guisan, G. DiDomenicantonio, M. Abid, J.-P. Abid, M. Hillenkamp, L. Gravier, J.-Ph. Ansermet, and Ch. Felix, *"Spin mixing processes in magnetic nanostructures detected by thermoelectric measurements"*, Nature Mater **5**, 730 (2006),
- [115] E. E. Fullerton and S. Mangin, *"Origin of the magneto-thermoelectric voltage in cluster-assembled metallic nanostructures"*, Nature Mat. **7** 257 (2008).
- [116] V. K. Pecharsky and K.A. Gschneidner, *"Giant magnetocaloric effect in $Gd_5(Si_2Ge_2)$ "*, Phys. Rev. Lett. **78** 4494 (1997), A. guiguère, M. Foldeaki, B. Ravi Gopal, R. Chahine, T. K. Bose, A. Frydman, and J. A. Barclay, *"Direct measurement of "giant" adiabatic temperature change in $Gd_5(Si_2Ge_2)$ "*, Phys. Rev. Lett **83**, 2262 (1999) ; F. Casanova, X. Batle, A. Labarta, J. Marcos, L. Manosa, A. Planes, *"Entropy change and magnetocaloric effect in $Gd_5(Si_xGe_{1-x})_4$ "*, Phys. Rev. B **66**, 100401 (2002)
- [117] R. D. McMichael, R. D. Shull, L. J. Swartzendruber, R. E. Watson and L. H. Bennett *"Magnetocaloric effect in superparamagnets"*, J. Mag. Mag. Magn. **111**, 29 (1992) and P. Podar, J. Gass, D. J. Rebar, S. Srinath, H. Srikanth, S. A. Morison, E. E. Carpenter, *"Magnetocaloric effect in ferrite nanoparticles"*, J. Magn. Magn. Mat. **307**, 227 (2006) and S. Hariharan and J. Gass, Rev. Adv. Mater. Sci. **10**, 398 (2005).
- [118] Y. K. Zheng et al. *"Magnetic random access memory (MRAM)"*, Journal of Nanoscience and Nanotechnology **7**, 117 (2007).