



HAL
open science

**Magnétisme, structure et morphologie des films minces
de cobalt déposés sur des surfaces vicinales de cuivre
Cu(1 1 11) et Cu(1 1 5)**

Anne Chaumin Midoir

► **To cite this version:**

Anne Chaumin Midoir. Magnétisme, structure et morphologie des films minces de cobalt déposés sur des surfaces vicinales de cuivre Cu(1 1 11) et Cu(1 1 5). Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris XII Val de Marne, 2002. Français. NNT: . tel-00001977

HAL Id: tel-00001977

<https://theses.hal.science/tel-00001977>

Submitted on 18 Nov 2002

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.

Université Paris XII - Créteil Val de Marne

N° attribué par la bibliothèque

THESE

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS XII

Discipline : Physique

présentée et soutenue publiquement le 4 novembre 2002

par

Anne Chaumin Midoir

Magnétisme, structure et morphologie des films minces de cobalt déposés sur des surfaces vicinales de cuivre

Cu(1 1 11) et Cu(115).

Directeurs de thèse :

Dominique CHANDESRIS et Alain MICHALOWICZ

Jury

M. Pierre PANISSOD	Rapporteur
Mme Sylvie ROUSSET	Rapporteur
Mme Elisabeth DARTYGE	Examineur
M. Bertrand KIERREN	Examineur
Mme Hélène MAGNAN	Examineur
M. Alain MICHALOWICZ	Examineur
Mme Dominique CHANDESRIS	Invitée

Remerciements

Je remercie Sylvie Rousset et Pierre Panissod d'avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse et d'avoir consacré de leur temps à la lecture de ce manuscrit. Merci également à Elisabeth Dartyge et Bertrand Kierren d'avoir fait partie du jury.

Je remercie Dominique Chandesris et Alain Michalowicz mes deux directeurs de thèse grâce à qui cette aventure de trois années a pu avoir lieu. Dominique a su grâce à son optimisme quasi légendaire m'apporter un certain recul sur mon travail ainsi que des idées nouvelles pour rebondir et explorer de nouvelles pistes. Alain Michalowicz de part sa gentillesse, son écoute des étudiants, a permis la réalisation de cette thèse au LURE dans l'équipe de mon choix. Il m'a également apporté un oeil critique très utile concernant mes résultats d'EXAFS de surface.

Je tiens également à remercier Hélène Magnan qui au cours de ces trois années m'a accompagnée jour après jour dans ma démarche scientifique. Elle a été autant présente lors des manips que de l'interprétation des résultats expérimentaux. Nos discussions furent nombreuses et firent germer bien des scénari capables d'expliquer les phénomènes que nous avons observés. La recherche demande quelquefois beaucoup d'imagination.....

Je remercie aussi Daniel Ragonnet notre technicien hors paire et notre maman à tous : enfin quelqu'un de très organisé. Il a été très efficace en concevant des portes échantillons sur mesure et en réparant rapidement les petits bobos expérimentaux de tous les jours. Son travail minutieux a été vraiment inestimable. Je garde un très bon souvenir de notre séjour à Strasbourg avec nos petits chocolats et les discussions interminables de Daniel qui font passer le trajet à vitesse grand V.

Je remercie Fabrice Scheurer pour son accueil strasbourgeois très chaleureux. Merci pour cette initiation au monde du magnétisme et ces précieux conseils et corrections. Je le remercie également pour sa grande disponibilité et toute l'aide qu'il m'a apportée. Je conseille aux personnes passant par l'Alsace et particulièrement intéressées par les dépôts de films minces un échantillon typiquement alsacien très apprécié constitué d'une monocouche de crème sur laquelle sont déposés à 370 K des îlots d'oignons et de lardons avec une couche d'emmental évitant ainsi l'oxydation le tout en épitaxie cohérente sur une crêpe, une flammekueche pour les spécialistes. Je remercie également Hervé Bulou pour ses calculs dans le modèle de Néel qui m'ont été fort utiles et son sens de l'humour qui vous dope pour la journée.

Un grand merci également à Luc Barbier, grâce à qui les expériences de STM se sont déroulées dans d'excellentes conditions. Merci pour cet encadrement et pour les discussions fructueuses qui ont permis d'interpréter les images de microscopie. Je reste admirative de cette technique offrant des images à l'échelle atomique.

Je tiens également à remercier Patrick Le Fèvre pour son aide sur la manip d'EXAFS, sa grande gentillesse et son cœur sur la main. Sa bonne humeur et son humour font partie intégrante de l'esprit du groupe SEXAFS et sont inimitables.

Grand merci à Gégé, mon fidèle collègue de bureau, pour ses "*conseils à un dinosaure de l'informatique*" et son initiation à \LaTeX ainsi que les innombrables barbeuks spécial thésards à Marcouss. Bref des moments inoubliables.

Notre bureau a pris très souvent des allures de cafet' vers 17h00 entre le thé à la menthe mythique de Rachid, le pisse-mamy, l'odeur du vrai café italien, les petits gâteaux et les bonbons Haribo, bref une grande convivialité, une bonne humeur quotidienne qui nous ont fait passer d'agréables moments. Je tiens à remercier Rachid grâce à qui j'ai découvert un pays formidable : le Maroc. Merci pour toutes ces discussions multiculturelles. Et puis dans notre fameux bureau, il y a eu Stéphanie et son festival de jolis colliers et il n'a pas que moi qui suis bavarde.... Mille mercis à Claudie avec qui nous avons instauré la pause pisse-mamy durant laquelle les discussions de physiques étaient formellement interdites.

Je tiens à remercier également toutes ces personnes très sympathiques rencontrées au LURE toujours prêtes à vous rendre service comme Agnès, Anne-Marie, Amina sans oublier Steffen, Gilles, Emiliano et Olivier H^+ . Merci aussi à toute l'équipe enseignante de Créteil avec laquelle j'ai collaboré pendant ces trois années de monitorat. Un merci tout particulier à Jacques Moscovici alias Jack Mosco un tuteur de choc, toujours soucieux des problèmes des étudiants et rendant la physique accessible à tous. Merci également à Moctar et Thibault pour les TP de diffraction-interférences, à Fred, Jean Guillaume, Saïd Amokrane, Karine. Sans oublier notre Dinette Intergalactique toujours prête à rendre service et Mouad.

Grand merci également à toute ma famille pour son soutien dans mon expédition parmi les atomes de cobalt : Jacqueline, Michel, Mimi, Madeleine, Paulette, Juliette, Eliane, Bernard, Christophe, Pierre, Claudine, Clarisse, Anaïs, Jacques, Simonne et tous mes amis. Sans oublier celui qui a été présent au quotidien et qui a du endurer toutes les répétitions des présentations orales, les coups de blues de la rédaction et les "*je n'y comprends plus rien du tout*".

Mille mercis à vous tous, sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est.

Table des matières

1	Introduction générale	1
2	Modèles utilisés pour le magnétisme des films de Co/Cu(11n)	9
2.1	Anisotropie magnétique des films minces	10
2.1.1	Anisotropie dipolaire ou anisotropie de forme	10
2.1.2	Anisotropie magnétocristalline de volume	12
2.1.3	Anisotropie magnétocristalline de surface	12
2.1.4	Anisotropie magnétoélastique	12
2.2	Détermination des constantes d'anisotropie magnétique à partir de cycles Kerr	13
2.2.1	Constantes d'anisotropie biaxiale et uniaxiale	13
2.2.2	Extraction des constantes d'anisotropie des cycles de re- tourneement de l'aimantation	17
	Méthode de détermination <i>classique</i> des constantes K_u et K_4	18
	Méthode de détermination dite de <i>Millev</i> des constantes K_u et K_4	19
2.3	Estimation des constantes d'anisotropie	24
2.3.1	Modèle magnétoélastique	25
2.3.2	Modèle de Néel	27
	Cas des marches droites	28
	Cas des marches doubles avec terrasses doubles	30
	Cas des marches ondulées	31
2.4	Conclusion	31
2.5	Annexe	33
2.5.1	Annexe A	33
2.5.2	Annexe B	34
2.5.3	Annexe C	35
2.5.4	Annexe D	37
	Création d'un cran sur la surface (1 1 11) et (115)	38
	Création d'un double cran sur la surface (1 1 11)	40

3	Théorie de l'EXAFS	44
3.1	Introduction	44
3.2	Généralités	45
3.3	Formule de l'EXAFS au seuil K en diffusion simple	48
3.3.1	Règle d'or de Fermi et coefficient d'absorption	49
3.3.2	Détermination de l'état final $ f\rangle$	50
3.3.3	Détermination de l'expression des oscillations EXAFS $\chi(k)$	53
3.3.4	Pertes inélastiques du photoélectron et durée de vie du trou profond	54
3.3.5	Agitation thermique et désordre structural.	55
3.4	EXAFS et théorie de la diffusion multiple	56
3.4.1	Importance de la théorie de la diffusion multiple en EXAFS	56
3.4.2	Introduction à la théorie de la diffusion multiple	56
3.5	De la théorie vers l'algorithme	60
3.5.1	Exemples de premières approximations utilisées	60
3.5.2	FEFF6 et algorithme de Rehr et Albers	62
	Contournement de la prolifération des composantes du moment angulaire	62
	Contournement de la prolifération des chemins de diffusion	63
3.5.3	Améliorations récentes du code FEFF	64
3.6	Simulations des spectres expérimentaux	64
3.6.1	Utilisation de FEFF6	64
3.6.2	Utilisation de FEFFIT	65
3.6.3	FEFFIT et dépouillement traditionnel	66
3.6.4	Modèles de cluster utilisés dans FEFFIT	67
	Modèle "film épais"	68
	Modèle "1 MC"	69
	Modèle "2 MC"	70
	Modèle "1 MC recouverte"	71
3.7	Conclusion	73
3.8	Annexe	73
3.8.1	Modèle "film épais"	74
	Chemin en diffusion simple	74
	Chemin de diffusion d'ordre 3	74
	Chemin de diffusion d'ordre n	75
3.8.2	Modèle "1MC"	75
	Chemin en diffusion simple atome central-atome de cobalt	76
	Chemin de diffusion simple atome central-atome de cuivre	76
4	Description des expériences	78
4.1	Description de DCI et de la ligne de lumière DW21	78
4.1.1	Production du rayonnement synchrotron	79
4.1.2	Description de la ligne de lumière DW21	80
4.2	Description de l'expérience SEXAFS	83

4.2.1	Mode de détection en EXAFS de surface	85
	Détection d'électrons	86
	Détection par fluorescence	87
4.3	Description de l'expérience Kerr	89
4.4	Description du microscope à effet tunnel	92
4.4.1	L'effet tunnel	93
4.4.2	Description du fonctionnement du microscope	94
4.4.3	Protocole de fabrication des pointes	96
4.4.4	Artéfacts de mesure	96
4.5	Préparation des échantillons	99
4.5.1	Bombardement ionique et recuit du substrat	99
4.5.2	Evaporation de films minces de cobalt	101
	Calibration avec une balance à quartz	102
	Calibration avec les spectres Auger	102
	Calibration avec le saut au seuil	105
4.5.3	Orientation des échantillons	106
5	Études précédentes sur les films de Co/Cu(001) et Co/Cu(11n)	111
5.1	Introduction	111
5.2	Récapitulatif bibliographique sur Co/Cu(001)	112
5.2.1	Propriétés magnétiques	112
5.2.2	Structure et morphologie	113
5.3	Récapitulatif bibliographique sur Co/Cu(11n)	115
5.3.1	Propriétés magnétiques	115
5.3.2	Morphologie	118
5.4	Conclusion bibliographique	119
6	Propriétés magnétiques du cobalt sur Cu(1 1 11) et Cu(115)	124
6.1	Introduction	125
6.2	Cycles Kerr selon l'axe difficile pour Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115)	126
6.2.1	Observations	126
6.2.2	Amplitude de cycle et quantité de cobalt	132
6.3	Détermination de K_4 et K_u sur Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115) . .	133
6.3.1	Simulations des cycles avec les valeurs expérimentales de K_u et K_4	135
6.3.2	Origine surfacique ou volumique de K_u et K_4 ?	137
	Comportement de $K_4 \times d$	137
	Comportement de $K_u \times d$	138
6.4	Mesures Kerr sur films de cobalt recouverts de cuivre	138
6.5	Conclusion	143
7	Étude par STM de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115)	147
7.1	Description des surfaces vicinales de cuivre	147
7.1.1	Surface de cuivre (1 1 11)	148
7.1.2	Surface de cuivre (115)	149

7.2	Premiers stades de croissance du cobalt	153
7.2.1	Interprétation de la morphologie de 0,01 MC Co/Cu(1 1 11)	153
7.2.2	Interprétation de la morphologie de 0,01 MC Co/Cu(115)	159
7.2.3	Conclusion	162
7.3	Dépôt de 1 MC de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115)	163
7.3.1	1,2 MC de cobalt sur Cu (1 1 11)	163
7.3.2	1 MC de cobalt sur Cu(115)	163
7.3.3	Conclusion	166
7.4	Dépôt de 3 MC de Co/Cu(1 1 11) et Cu(115)	169
7.4.1	3 MC de Co/Cu(1 1 11)	169
7.4.2	3 MC de Co/Cu(115)	169
7.4.3	Conclusion	170
7.5	Dépôt de 5 MC de Co/Cu(1 1 11) et Cu(115)	170
7.5.1	5,5 MC de Co/Cu (1 1 11)	170
7.5.2	5,5 MC de Co/Cu(115)	173
7.5.3	Conclusion	176
7.6	Dépôt de 8 MC de Co/Cu(1 1 11) et Cu(115)	176
7.6.1	7,3 MC de Co/Cu(1 1 11)	176
7.6.2	8,4 MC Co/Cu(115)	177
7.6.3	Conclusion	177
7.7	Films de cobalt recuits sur Cu (1 1 11)	179
7.8	Conclusion générale sur la morphologie des films de cobalt sur Cu(1 1 11) et Cu(115)	179
7.9	Annexe A	181
7.10	Annexe B	183
8	Structure du cobalt sur Cu(1 1 11) et Cu(115) par SEXAFS	189
8.1	Conditions expérimentales	190
8.2	Utilisation de la polarisation linéaire du rayonnement synchrotron	190
8.3	Explication des différentes étapes de l'analyse	192
8.4	Ajustement des modèles théoriques à l'expérience	193
8.5	Structure des films de 0,5 MC Co/Cu(1 1 11)	195
8.5.1	Conclusion	202
8.6	Structure des dépôts de 1 MC de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115) .	202
8.6.1	1 MC Co sur Cu(1 1 11), Cu(115) et Cu(001) déposée à 300 K	202
8.6.2	1 MC Co/Cu(1 1 11) évaporée à différentes températures .	207
8.6.3	Conclusion	208
8.7	Structure des dépôts épais de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115) . . .	210
8.7.1	3 à 8 MC de cobalt sur Cu(1 1 11)	210
8.7.2	3 MC à 8 MC de Co sur Cu(115)	213
8.8	Structure des films recouverts	215
8.9	Conclusion	217
8.10	Annexe	219

9	Corrélation des résultats de magnétisme de structure et de morphologie	236
9.1	Modèle magnétoélastique	236
9.2	Modèle de Néel	241
9.2.1	Simulation de la contribution de la surface	241
9.2.2	Simulation de la contribution d'interface	246
9.3	Interaction dipolaire	247
9.4	Conclusion	247
10	Conclusion générale	250
11	Conduite du projet de recherche	255
11.1	Introduction	255
11.2	Rapide présentation du travail de thèse	255
11.2.1	Présentation de mon domaine de recherche	255
11.2.2	Problématique de mon sujet de thèse	256
11.2.3	Moyens mis en œuvre	256
11.2.4	Résultats	257
11.3	La thèse dans son contexte	258
11.3.1	Le choix de ma thèse	258
11.3.2	La thèse au sein de l'équipe m'accueillant	258
11.4	Conduite et organisation du travail	259
11.5	Bilan financier du projet de recherche	260
11.6	Bilan des compétences acquises	260
11.6.1	Compétences techniques et expérimentales	261
11.6.2	Compétences rédactionnelles	261
11.6.3	Compétences informatiques	262
11.6.4	Compétences d'analyse des résultats expérimentaux	262
11.7	Liste de publications et conférences	262
11.7.1	Liste de publications	262
11.7.2	Conférences	263
11.8	Conclusion	263

Chapitre 1

Introduction générale

L'évaporation de matériaux magnétiques sur des substrats monocristallins a permis l'élaboration d'une nouvelle classe de matériaux aux propriétés magnétiques et électroniques originales. Ces objets ayant des dimensions réduites, ont souvent des caractéristiques différentes de celle du matériau massif, ces différences pouvant provenir de l'existence de surfaces et d'interfaces ou de contraintes de structure cristallographique induites par la croissance sur un substrat. Leur propriétés magnétiques singulières intéressent tout particulièrement les industriels pour leurs perspectives d'applications notamment dans le domaine du stockage de l'information. En effet, à la fois, la fabrication d'un médium à base de couches minces et la mise au point de têtes de lecture utilisant les effets de magnétoresistance géante dans les empilements de matériaux d'épaisseurs de l'ordre du nanomètre permettra ou permet déjà d'augmenter la densité de stockage, repoussant toujours les limites. Les nanoobjets magnétiques offrent l'opportunité d'étudier le magnétisme pour d'extrêmement petites quantités d'atomes. Ces plots ou ces chaînes d'atomes peuvent être vus comme des nanoaimants [1][2], ils peuvent ainsi jouer le rôle de codeurs de l'information s'ils présentent une direction préférentielle d'aimantation. Toutefois, la répartition de ces objets magnétiques doit être telle que ces nanoobjets ne puissent pas interagir entre eux afin que l'information magnétique qu'ils portent soit stable. Afin de fabriquer des petits objets ayant des caractéristiques bien définies, des études plus fondamentales en amont de la technologie sont donc nécessaires. La fabrication contrôlée de nanostructures sur une surface reste encore un défi difficile, en effet leur taille, leur forme et leur structure dépendent fortement des conditions de préparation.

Une des méthodes utilisées permettant l'élaboration de nanoobjets est l'évaporation sur un substrat initialement nanostructuré comme par exemple les surfaces vicinales. De nombreuses études ont été menées sur des dépôts réalisés sur des surfaces à marches. Les marches engendrent une rupture de la symétrie. De nombreux paramètres phy-

siques peuvent gouverner la morphologie des dépôts. Par exemple, suivant le désaccord de maille relatif existant entre le substrat et l'adsorbat, ce dernier sera en épitaxie pseudomorphe ou non. Dans un cas où le désaccord de maille est important, il peut y avoir formation d'îlots ou de dislocations, ainsi le paramètre de maille de l'adsorbat peut relaxer. La différence de tension de surface existant entre l'adsorbat et le substrat est également un acteur important : l'élément ayant la tension de surface la plus faible aura tendance à ségréger en surface afin de minimiser l'énergie libre du système. De plus, la différence de mobilité entre les atomes peut aussi gouverner la morphologie du dépôt. Ce facteur est surtout important sur une surface vicinale où la mobilité des atomes est anisotrope dans le plan des terrasses à cause de la barrière de Ehrlich-Schwoebel. Cette dernière rend la probabilité d'adsorption d'un atome plus grande sur la marche ascendante qu'au bord d'une marche descendante [4]. La littérature montre que le dépôt sur les faces vicinales conduit à des morphologies très différentes. La microscopie à effet tunnel (STM) est alors un outil de choix permettant de sonder la morphologie des dépôts. Dans le cas de films de cobalt sur Pt(997), l'adsorbat forme des chaînes d'atomes le long des marches [5][6], pour Co/Au(111) [7] la vicinalité du substrat crée des nanostructures autoorganisées, sur Fe/Cu(111) des îlots apparaissent le long des bords de marches [8][9] et pour Fe/W(110) à marches suivant la direction des marches, le fer forme des bandes ou bien une chaîne d'îlots triangulaires le long des bords de marches [10].

Dans bons nombres d'exemples précédemment étudiés, l'aimantation des dépôts magnétiques sur une surface vicinale présente un axe unique de facile aimantation lié à la rupture de symétrie qui est généralement le long des bords de marches. Dans certains exemples plus rares tels que les dépôts de fer sur un substrat à marches de tungstène (100) [11], la direction de facile aimantation est perpendiculaire aux bords de marches. La question est alors de connaître l'origine de cette anisotropie magnétique uniaxiale.

Les études de magnétisme menées montrent dans la plupart des cas que plus les terrasses sont étroites plus l'anisotropie magnétique est importante et qu'elle décroît généralement avec l'épaisseur. Ceci indique de manière générale que les atomes de surface et ceux situés aux bords des marches doivent avoir un rôle primordial dans l'anisotropie uniaxiale [12][13][14]. Dans d'autres cas, l'anisotropie magnétique uniaxiale est interprétée par la présence des terrasses étroites qui gênent des relaxations de structure de l'adsorbat anisotropes dans le plan de la surface : ceci a été clairement montré dans le cas des rubans de fer découpés par la méthode de "la scie atomique" [16] et supposé dans d'autres cas comme sur Fe/Ag (001) à marches [15]. Ceci signifie donc que plusieurs phénomènes physiques peuvent être à l'origine de l'anisotropie magnétique sur les surfaces vicinales. Les modèles couramment utilisés sont le

modèle de Néel (en tenant compte des liaisons manquantes à la surface et aux bords de marches), le modèle magnétoélastique (en tenant compte des contraintes dans le film) et l'anisotropie de forme [3]. L'importance relative de chacune de ces contributions déterminera la force et la direction de l'anisotropie uniaxiale générée par le dépôt d'adsorbat magnétique sur un substrat à marches.

L'objet de cette thèse est l'étude des films de cobalt déposés sur Cu(11n). La surface de cuivre (11n) présente des terrasses d'orientation (001) séparées par des marches monoatomiques. Sur les systèmes Co/Cu(11n), une anisotropie magnétique uniaxiale parallèle aux bords des marches a été mesurée [12][14][17], cependant, aucune étude n'a été menée pour déterminer la structure du cobalt et mesurer les éventuelles relaxations de la maille de l'adsorbat. De même, peu d'expériences de microscopie à effet tunnel (STM) ont été réalisées sauf pour Co/Cu(1 1 17) [19]. Contrairement à d'autres systèmes comme Co/Pt(997) [5] où le cobalt décore le bord des marches, la littérature montre que dans le cas de Co/Cu(11n), l'évaporation de cobalt induit une ondulation des bords de marches.

L'intérêt de notre travail réside dans le couplage de trois techniques : l'effet Kerr magnéto-optique pour mesurer les propriétés magnétiques, la microscopie à effet tunnel pour sonder la morphologie et l'EXAFS de surface pour déterminer précisément la structure des films. Ces trois types d'expériences permettent une analyse relativement complète du comportement des films de cobalt en fonction de leur épaisseur contrairement à la littérature qui n'offre que des études assez morcelées de ces systèmes. Les expériences précédentes montrent que l'anisotropie magnétique est plus grande sur des substrats présentant d'étroites terrasses, mais seules des conjectures sont faites pour expliquer les probables origines de l'anisotropie et aucune preuve tangible n'est apportée.

Nous avons choisi d'étudier les films de cobalt déposés sur Cu(1 1 11) et Cu(115). Ces substrats présentent des marches très étroites respectivement 14 et 6,4 Å. Les études précédentes sur Co/Cu(11n) ont été réalisées sur des substrats ayant des terrasses plus larges que nos deux substrats. Par conséquent, sur Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115), l'anisotropie uniaxiale y sera plus marquée et la détermination de ses origines plus aisée. De plus, ces surfaces vicinales de cuivre sont bien connues : Cu(1 1 11) est une surface rugueuse à température ambiante alors que Cu(115) ne l'est pas.

La caractérisation précise de la structure ainsi que de la morphologie vont nous permettre de simuler leurs contributions à l'anisotropie magnétique uniaxiale grâce à des calculs de magnétoélasticité et au modèle de Néel.

De manière plus précise, nous allons établir un plan détaillé de ce manuscrit. Le **chapitre 2** débute par un récapitulatif des différents phénomènes physiques (morphologie, contraintes) pouvant engendrer une anisotropie magnétique dans les films minces.

Cette première partie est suivie d'une présentation du modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth simulant le retournement de l'aimantation du film lorsqu'un champ magnétique est appliqué. Puis nous décrirons comment, à partir des cycles obtenus par mesure de l'effet Kerr magnéto-optique, il est alors possible de quantifier l'anisotropie magnétique. Ce chapitre se clôt par une description du modèle magnétoélastique, permettant de simuler l'anisotropie magnétique engendrée par des distorsions de structure ainsi que le modèle de Néel calculant l'anisotropie générée par les liaisons manquantes en surface et le long des bords de marches.

Le **chapitre 3** est consacré à l'EXAFS de surface. Dans cette partie, nous rappelons comment à partir des oscillations observées après le seuil d'absorption, il est possible de remonter aux informations structurales de l'élément excité. Nous établirons la formule de l'EXAFS au seuil K en détaillant les différentes étapes et les hypothèses utilisées. Un paragraphe sera consacré à la théorie de la diffusion multiple et à son formalisme. Puis les logiciels de simulation des oscillations EXAFS utilisant la diffusion multiple seront détaillés et enfin les modèles de clusters utilisés pour l'analyse des données expérimentales seront exposés.

Le **chapitre 4** est une présentation des différents dispositifs expérimentaux utilisés pendant ce travail de thèse ainsi que le protocole de préparation des différents échantillons.

Le **chapitre 5** précède nos résultats expérimentaux. Cette partie est une synthèse bibliographique des résultats obtenus précédemment sur Co/Cu(001) et sur les dépôts de cobalt sur des surfaces à marches de cuivre.

Le **chapitre 6** ouvre la partie consacrée aux résultats expérimentaux. Il présente nos mesures d'effet Kerr magnéto-optiques ainsi que l'exploitation des cycles Kerr que nous avons réalisée en fonction de l'épaisseur de cobalt. Le **chapitre 7** aborde les expériences de STM qui nous ont permis de sonder la morphologie de nos échantillons. Le **chapitre 8** présente les mesures d'EXAFS de surface ainsi que l'évolution de la structure du cobalt en fonction de l'épaisseur du film. Enfin le **chapitre 9** offre une simulation de l'anisotropie uniaxiale avec la morphologie et la structure des films et permet ainsi de conclure sur l'origine de l'anisotropie uniaxiale rencontrée sur les films de Co/Cu(11n).

Ce travail est donc scindé en trois parties principales. La première, regroupant les **chapitres 2 et 3**, détaille respectivement les modèles magnétiques et structuraux utilisés. Le **chapitre 4** présente les dispositifs expérimentaux ainsi que le protocole de fabrication des échantillons, tandis que la dernière partie constituée des **chapitres 5, 6, 7, 8 et 9** exposent les résultats expérimentaux et leur analyse. Cette nette scission entre la partie théorique et l'exploitation des résultats est volontaire, pour permettre une meilleure lisibilité des résultats expérimentaux afin qu'ils ne soient pas noyés dans

des parties plus théoriques.

Le **chapitre 11** quant à lui aborde cette étude sous l'angle d'un projet professionnel, il permettra de faire un bilan de ces trois années et de prendre du recul sur ce travail.

Bibliographie

- [1] J. Shen et J. Kirschner, *Surf. Sci.* **500**, 300 (2002).
- [2] S. D. Bader, *Surf. Sci.* **500**, 172 (2002).
- [3] Rodrigo Arias et D. L. Mills, *Phys. Rev. B* **59**, 11871 (1999).
- [4] R. L. Schwoebel, *J. Appl. Phys.* **40**, 614 (1969).
- [5] P. Gambardella, M. Blanc, L. Bürgi, K. Kuhnke et K. Kern, *Surf. Sci.* **449**, 93 (2000).
- [6] P. Gambardella, A. Dallmeyer, K. Maiti, M.C. Malagoli, W. Eberhardt, K. Kern et C. Carbone, *Nature* **416**, 301 (2002).
- [7] V. Repain, J. M. Berroir, S. Rousset et J. Lecoœur, *Surf. Sci.* **447**, L152 (2000).
- [8] J. Shen, R. Skomski, M. Klaua, J. Jenniches, S. Manoharan et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **56**, 2340 (1997).
- [9] J. Shen, M. Klaua, P. Oehresser, H. Jenniches, J. Barthel, C.V. Mohan et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **56**, 11134 (1997).
- [10] H. J. Elmers, J. Hauschild et U. Gradmann, *J. Mag. Mag. Mat.* **221**, 219 (2000).
- [11] Hector C. Mireles et J. L. Erskine, *Phys. Rev. Lett.* **447**, 87 (2001).
- [12] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcia-Aparicio et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **58**, R5924 (1998).
- [13] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcia-Aparicio et Z. Q. Qiu, *J. Appl. Phys.* **85**, 4955 (1999).
- [14] Z. Q. Qiu et S. D. Bader, *Surf. Sci.* **438**, 319 (1999).
- [15] Y. Z. Wu, C. Won et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **65**, 184419-1 (2002).
- [16] H. Jaffrès, P. Le Fèvre, H. Magnan, A. Midoir, D. Chandèsris, L. Ressler, A. Schuhl, F. Nguyen Van Dau, M. Goiran, J. P. Peyrade et A. R. Fert, *Phys. Rev. B* **61**, 14628 (2000).
- [17] W. Wulfhekel, S. Knappmann et H. P. Oepen *J. Appl. Phys.* **79**, 988 (1996).

- [18] H. P. Oepen, C. M. Schneider, D. S. Chuang, C. A. Ballentine et R. C. O'Handley
J. Appl. Phys. **73**, 6186 (1993).
- [19] M. Giesen, F. Schmitz et H. Ibach, Surf. Sci. **336**, 269 (1995).

Chapitre 2

Modèles utilisés pour le magnétisme des films de Co/Cu(11n)

Afin d'étudier les propriétés magnétiques des films minces de cobalt déposés sur des substrats à marche de cuivre Cu(115) et Cu (1 1 11), nous avons réalisé des mesures magnéto-optiques par effet Kerr *in situ* à l'Institut de Physique et Chimie de Strasbourg en collaboration avec Fabrice Scheurer.

Les effets magnéto-optiques tel que l'effet Kerr ou l'effet Faraday proviennent de l'interaction entre une onde électromagnétique et un milieu aimanté. Lorsqu'une onde incidente polarisée linéairement est réfléchi (effet Kerr) ou transmise (effet Faraday) par un milieu aimanté, les ondes sortantes du matériau ont une polarisation elliptique. L'effet Kerr est un effet magnéto-optique qui est au premier ordre proportionnel à l'aimantation. De telles expériences permettent d'étudier les processus de retournement de l'aimantation.

Des mesures antérieures d'effet Kerr effectuées sur des films minces de cobalt déposés sur des surfaces de cuivre à marches (Cu(1 1 17) [1] et Cu(1 1 13) [2]), ont montré que le cobalt présentait une anisotropie magnétique uniaxiale, tandis que les films de cobalt déposés sur un substrat plat de cuivre (001) avaient une anisotropie magnétique biaxiale [3][4][5]. Devant ces différences de comportement magnétique du cobalt déposé sur un substrat de cuivre plat (001) ou vicinal avec des terrasses (001), nous débuterons ce chapitre en décrivant les différents phénomènes pouvant être à l'origine de directions d'aimantation préférentielles. Puis, nous nous attarderons sur le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth utilisé et les différentes hypothèses qui peuvent être faites pour extraire les valeurs des constantes d'anisotropie magnétique de nos mesures magnéto-optiques par effet Kerr. Dans une dernière partie, nous ex-

poserons deux modèles qui permettent d'évaluer l'anisotropie magnétique en tenant compte de la structure des dépôts (modèle magnétoélastique) et de leur morphologie (modèle de Néel).

2.1 Anisotropie magnétique des films minces

L'anisotropie magnétique d'un matériau traduit le fait que son énergie libre dépend de la forme du matériau et de l'orientation de son aimantation par rapport à ses axes cristallographiques. L'orientation pour laquelle cette énergie libre est minimale (respectivement maximale) correspond à un axe de facile (difficile) aimantation. Cette anisotropie peut avoir différentes origines. Dans ce premier paragraphe, nous décrirons de manière phénoménologique les différentes contributions engendrant des anisotropies magnétiques dans les films minces. Soit E_a , la densité d'énergie d'anisotropie et ses principales composantes :

$$E_a = E_d + E_{mcV} + \frac{E_{mcSI}}{d} + E_{me} \quad (2.1)$$

E_d correspond à la densité d'énergie d'anisotropie dipolaire, E_{mcV} est la densité d'énergie magnétocristalline de volume, E_{mcSI} est la somme de la densité d'énergie magnétocristalline de surface et d'interface, E_{me} correspond au terme d'anisotropie magnétoélastique et d est l'épaisseur du dépôt.

2.1.1 Anisotropie dipolaire ou anisotropie de forme

L'interaction dipolaire est responsable du terme d'anisotropie dipolaire noté E_d . L'énergie d'interaction dipolaire entre deux moments magnétiques \vec{m}_i et \vec{m}_j , typiquement deux spins contenus dans le film, s'écrit :

$$E_{ij} = \frac{\vec{m}_i \cdot \vec{m}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\vec{m}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{m}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \quad (2.2)$$

avec \vec{r}_{ij} le vecteur joignant les deux dipôles magnétiques. Cette interaction est anisotrope, car elle dépend de la direction des spins relativement à la direction ij . Sa dépendance en $\frac{1}{r^3}$ lui confère un caractère à longue distance. Ainsi, cette interaction est sensible à la morphologie des dépôts, c'est pourquoi elle est très souvent appelée anisotropie de forme.

Dans le cas d'un film mince, l'énergie dipolaire est minimale lorsque l'aimantation est parallèle à la surface à cause de la présence du champ démagnétisant. Ce dernier tend donc à ramener l'aimantation dans le plan du film. Patrick Bruno calcule dans sa thèse [7] l'effet de la rugosité de la surface sur l'anisotropie dipolaire. Dans le cas d'un

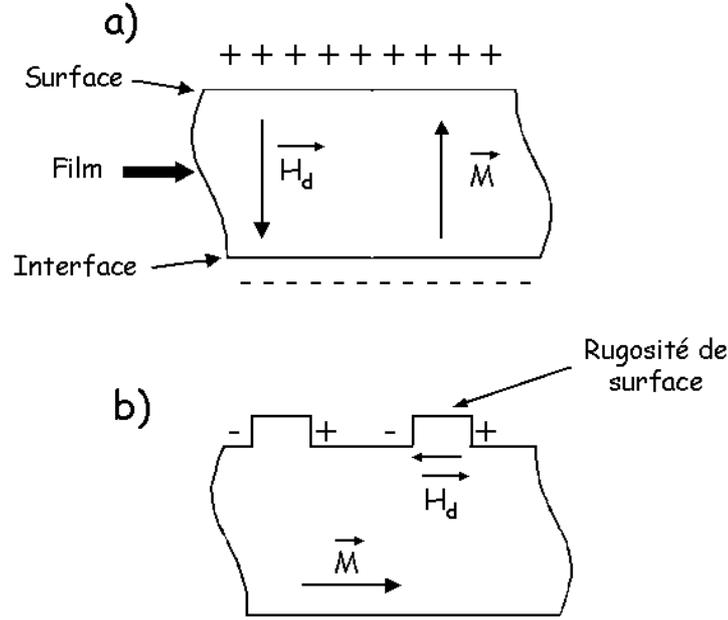


FIG. 2.1: Schéma représentant les pseudo-charges magnétiques et le champ démagnétisant dans le cas d'un film parfait (fig a) et dans le cas d'un film rugueux (fig b).

film aux faces parfaitement planes, la composante perpendiculaire de l'aimantation \vec{M} produit sur les faces du film des pseudo-charges magnétiques, induisant un champ \vec{H}_d (champ démagnétisant) qui lui est opposé (figure 2.1.a). L'énergie magnétostatique est nulle lorsque l'aimantation est parallèle à la surface et vaut $2\pi M^2$ lorsque l'aimantation est perpendiculaire. L'énergie d'anisotropie dipolaire associée s'écrit alors de la manière suivante :

$$E_d = (E_d^{M//surface} - E_d^{M\perp surface}) \sin^2 \theta = -2\pi M^2 V \sin^2 \psi \quad (2.3)$$

avec ψ l'angle entre l'aimantation et la normale à la surface du film. Lorsque la surface du film présente des rugosités, les pseudocharges magnétiques se répartissent sur les bords des terrasses produisant alors un champ démagnétisant parallèle au plan du film (figure 2.1.b). L'effet d'une telle rugosité a alors comme conséquence de diminuer l'anisotropie dipolaire puisque l'énergie magnétostatique est non nulle lorsque l'aimantation est dans le plan. P. Bruno [7] montre également que comme le champ démagnétisant parallèle à la surface existe essentiellement aux bords des rugosités, l'énergie magnétostatique associée est proportionnelle à l'amplitude de rugosité et non à l'épaisseur du film. Ainsi dans le cas de surface vicinale et puisque nous étudions le retournement de l'aimantation dans le plan du film de type (11n), une anisotropie

dipolaire existera entre la direction parallèle aux bords de marches et celle perpendiculaire aux bords de marches. En effet, l'énergie magnétostatique sera nulle dans la direction des bords de marches à cause de leur taille infinie tandis que celle dans la direction perpendiculaire sera non nulle du fait de la largeur finie des terrasses.

2.1.2 Anisotropie magnétocristalline de volume

Cette anisotropie résulte du couplage spin-orbite. Cette interaction couple le spin avec la densité de charge dans un cristal et par conséquent est sensible à la structure cristallographique. Cette anisotropie peut être décrite de manière phénoménologique par des constantes d'anisotropie magnétocristalline. Voici en exemple l'anisotropie magnétocristalline de volume d'un système cubique, en se limitant aux ordres les plus importants :

$$E_{mcV} = K_4 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2) + K_6 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2) + \dots \quad (2.4)$$

avec K_4 et K_6 des constantes magnétocristallines et les cosinus directeurs α_i de l'aimantation. Les α_i sont la projection de l'aimantation normalisée $\left(\frac{\vec{M}}{M}\right)$ sur les axes cristallographiques du système étudié.

2.1.3 Anisotropie magnétocristalline de surface

La surface et l'interface représentent une rupture de symétrie du cristal, ce qui crée un couplage spin-orbite localement différent et génère un terme d'anisotropie magnétocristalline propre à la surface et à l'interface. En 1954, Néel [6] fut l'un des premiers à souligner que cette rupture de symétrie à la surface (et à l'interface) pouvait créer une anisotropie magnétique non négligeable face à celle du volume, en raison de la plus faible symétrie des atomes de surface (d'interface). Ainsi leur anisotropie magnétique pourrait être de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des atomes de volume. Cette anisotropie de surface peut devenir très importante notamment pour les films minces pour lesquels le rapport entre le nombre d'atomes de surface et d'atomes de volume est grand [7].

2.1.4 Anisotropie magnétoélastique

Ce type d'anisotropie est également lié au couplage spin-orbite. Ces interactions d'échange étant sensibles à la distance interatomique, sous l'effet de contraintes structurales, l'énergie magnétique peut être modifiée. Un terme d'énergie magnétoélastique apparaît dès qu'il existe des contraintes structurales que l'on peut rencontrer dans les

films hétéroépitaxiés comme par exemple les films de cobalt sur le cuivre. En effet, le cobalt présente un désaccord de maille 2 % avec le cuivre ce qui engendre des contraintes dans le film de cobalt. La déformation de la maille de l'adsorbat pour s'adapter au substrat peut générer un terme d'anisotropie magnétique. La composante E_{me} s'écrit en fonction du tenseur ε de déformation et des cosinus directeurs α_i de l'aimantation :

$$E_{me} = B_1 (\varepsilon_{11}\alpha_1^2 + \varepsilon_{22}\alpha_2^2 + \varepsilon_{33}\alpha_3^2) + 2B_2 (\varepsilon_{12}\alpha_1\alpha_2 + \varepsilon_{13}\alpha_1\alpha_3 + \varepsilon_{23}\alpha_2\alpha_3) + \dots \quad (2.5)$$

où B_1 et B_2 sont les constantes d'anisotropie magnétoélastiques.

2.2 Détermination des constantes d'anisotropie magnétique à partir de cycles Kerr

Dans cette partie, nous allons décrire de manière détaillée les méthodes utilisées pour extraire les constantes d'anisotropie d'un cycle Kerr typique obtenu sur Co/Cu(11n) ainsi que le modèle de Stoner-Wohlfarth auquel nous avons fait appel.

2.2.1 Constantes d'anisotropie biaxiale et uniaxiale

De manière pratique, l'effet Kerr magnéto-optique consiste à suivre le retournement de l'aimantation d'un matériau magnétique lorsqu'un champ extérieur est appliqué dans une direction donnée.

Nous présentons sur la figure 2.2 deux cycles Kerr caractéristiques obtenus sur des films minces de Co/Cu(115) en appliquant le champ extérieur soit parallèlement aux bords de marches (fig. a), soit perpendiculairement aux bords de marches dans le plan (11n) (fig. b). En abscisse est représentée l'intensité du champ appliqué ; en ordonnée l'ellipticité qui est proportionnelle à l'aimantation de l'échantillon. Ces deux cycles (figure 2.2) ont été mesurés sur un film de 8 MC de cobalt déposé sur Cu(11n), mais une grande ressemblance est observée aussi bien pour les dépôts réalisés sur Cu(111) que sur les expériences précédentes sur Cu(111n) [2][8][9][10][11].

La figure 2.2.a présente un cycle carré typique de l'alignement du champ extérieur appliqué avec un axe de facile aimantation. Le cycle de la figure 2.2.b est caractéristique d'un champ extérieur appliqué selon un axe de difficile aimantation (pour $H = 0$, l'aimantation M est nulle). Cet axe combine un caractère de facile aimantation biaxiale avec un caractère uniaxial. Dans les exemples d'études magnétiques citées ci-dessus, les cycles selon l'axe difficile obtenus sur des substrats de cuivre ayant des terrasses plus importantes sont similaires à celui de la figure 2.7 (Co/Cu(1117) [11]). Il est à noter que sur ces cycles, deux boucles d'hystérésis sont présentes de part et d'autre

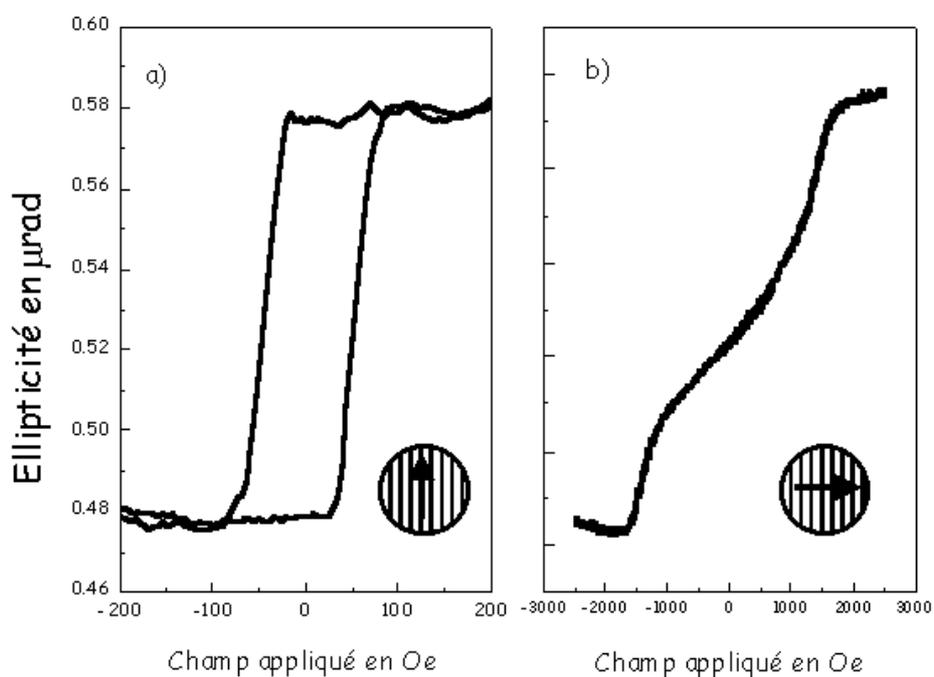


FIG. 2.2: Cycles Kerr obtenus sur un échantillon de 8 MC Co/Cu(1 1 5). La figure a correspond à un champ extérieur H appliqué dans la direction parallèle aux bords de marches. Pour le cycle b, H est appliqué dans le plan Cu (115) dans la direction perpendiculaire aux bords de marches. Pour le cycle a, le champ coercitif est égal à 50 Oe. Le cycle b présente deux inflexions situées à ± 1500 Oe.

du champ nul et la largeur de la boucle est plus importante que celle observée sur la figure 2.2.b.

Les cycles mesurés par effet Kerr sont intimement liés aux processus de retournement de l'aimantation. A saturation de la couche magnétique, le film est composé d'un unique domaine aimanté selon la direction du champ appliqué. Après saturation, lorsque H est selon l'axe facile ou selon l'axe difficile, le matériau pour un champ nul peut soit présenter un monodomaine soit des polydomaines avec M autour de la direction de facile aimantation. A Berger et al. montrent grâce au microscope électronique à balayage avec analyse de la polarisation, l'existence de domaines magnétiques sur un film de 5 MC Co/Cu(1 1 13) [12]. Les auteurs montrent également l'existence de domaines de forme similaire sur Co/Cu(001). A l'intérieur d'un domaine, les spins sont parallèles tandis que leur direction d'un domaine à un autre varie. Cette variation de direction de l'aimantation d'un domaine à l'autre s'effectue graduellement, cette zone transitoire est appelée paroi de domaine. Lors du processus de renversement de l'aimantation, le phénomène qui limite la réorientation de l'aimantation le long de la direction du champ appliqué est la vitesse de propagation des parois de domaines. Un tel renversement est composé d'une phase de nucléation de domaine suivie d'une phase de propagation des parois de domaines [13].

Le renversement de l'aimantation en présence d'un champ extérieur est par conséquent un processus difficile à modéliser. Pour décrire la forme des cycles Kerr, nous utilisons le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth [14]. Ce modèle suppose un renversement cohérent de l'aimantation, i.e. tous les spins sont alignés et tournent ensemble avec l'intensité grandissante du champ extérieur. Il est à noter que ce modèle ne tient pas compte de l'existence de domaines magnétiques. Nous reviendrons sur ce point dans la partie consacrée à l'analyse des résultats.

Grâce à la description phénoménologique de Stoner-Wohlfarth et dans le cas d'une anisotropie magnétique ayant une contribution uniaxiale et biaxiale, $E(\Phi)$ la densité d'énergie libre du film magnétique lorsque l'on applique un champ magnétique \vec{H} s'écrit :

$$E(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + K_4 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2) - \vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2.6)$$

avec \vec{M} l'aimantation du film, α_i sont les cosinus directeurs de l'aimantation, Φ est l'angle entre l'aimantation \vec{M} et l'axe de facile aimantation (figure 2.3). On définit K_4 et K_u les constantes d'anisotropie respectivement biaxiale et uniaxiale (figure 2.4).

Prenons le cas des films de cobalt déposés sur Cu(11n) pour lesquels, l'axe facile est le long des bords de marches dans la direction $[1\bar{1}0]$. Si on suppose que le renversement de l'aimantation s'effectue dans le plan des terrasses (001), la formule 2.6 s'écrit alors :

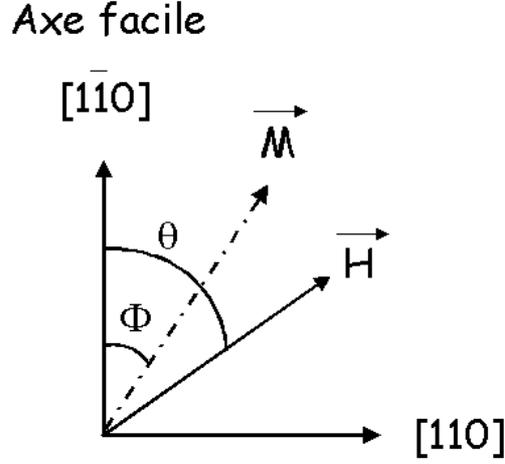


FIG. 2.3: Schéma représentant les différents angles utilisés dans l'expression de la densité d'énergie libre.

$$E(\Phi) = \underbrace{K_u \sin^2 \Phi}_A + \underbrace{\frac{K_4}{4} \cos^2 2\Phi}_B - \underbrace{M_s H \cos(\theta - \Phi)}_C \quad (2.7)$$

Les angles sont représentés sur la figure 2.3. Le terme C correspond à l'interaction entre l'aimantation et le champ extérieur appliqué H , dit terme d'énergie Zeeman. M_s est l'aimantation à saturation. Le terme B est la contribution d'anisotropie de symétrie d'ordre 4 ce qui correspond à une anisotropie biaxiale. Le terme A est la contribution uniaxiale à l'anisotropie magnétique.

Dans la formule 2.7, d'après les angles utilisés, une valeur positive de K_4 signifie que la contribution biaxiale de facile aimantation est selon les axes $[100]$ et $[010]$. Si au contraire, $K_4 < 0$ les axes de facile aimantation sont selon $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$. Une valeur positive de K_u indique que la contribution uniaxiale de facile aimantation est selon $[\bar{1}\bar{1}0]$ et si $K_u < 0$ alors l'axe facile est le long de la direction $[110]$. Nos données expérimentales sur Cu(1 1 11) et Cu(115) montrent que la direction de facile aimantation est selon $[\bar{1}\bar{1}0]$ et que l'axe difficile est le long de $[110]$ ce qui signifie que $K_4 < 0$ et $K_u > 0$.

De manière expérimentale, il est difficile de distinguer les différents types d'anisotropie que nous avons cités précédemment dans le paragraphe 2.1 (anisotropie magnéto-cristalline, magnétoélastique, de forme ...). Les valeurs de K_4 et K_u que nous mesurons sont alors des constantes d'anisotropie effectives incluant des contributions liées aux différentes origines de l'anisotropie ainsi $K_u = K_u^{dipolaire} + K_u^{magnétoélastique} + \text{etc...}$ De manière phénoménologique, K_4 et K_u sont souvent écrites avec une contribution de

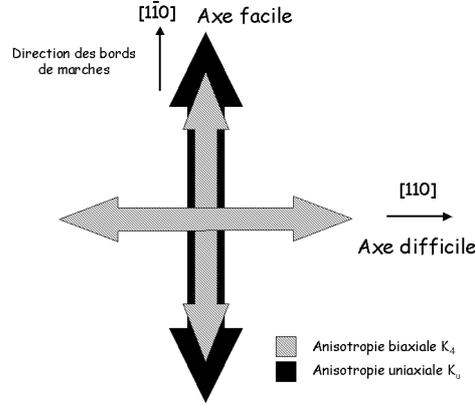


FIG. 2.4: Représentation schématique de l'anisotropie biaxiale et de l'anisotropie uniaxiale pour les films de Co/Cu(11n).

volume K^V et une contribution de surface-interface K^{SI} :

$$K_4 = K_4^V + \frac{K_4^{SI}}{d} \quad \text{et} \quad K_u = K_u^V + \frac{K_u^{SI}}{d} \quad (2.8)$$

avec d l'épaisseur du film. Ainsi en traçant la variation de K_4 et K_u en fonction de l'épaisseur du film, les contributions de volume et de surface-interface peuvent être déterminées si ces dernières sont constantes avec l'épaisseur.

2.2.2 Extraction des constantes d'anisotropie des cycles de retournement de l'aimantation

D'après l'équation 2.7, la densité d'énergie libre, lorsque \vec{M} est dans le plan (001), s'écrit :

$$E(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + \frac{K_4}{4} \cos^2 2\Phi - M_s H \cos(\theta - \Phi) \quad (2.9)$$

En appliquant le champ dans la direction de l'axe difficile ($\theta = \frac{\pi}{2}$), la densité d'énergie libre, avec \vec{M} est dans le plan (001), devient

$$E(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + \frac{K_4}{4} \cos^2 2\Phi - M_s H \sin \Phi \quad (2.10)$$

Ainsi en mesurant uniquement les cycles Kerr obtenus en appliquant le champ selon l'axe difficile, il est alors possible de déterminer les deux constantes d'anisotropie K_u et K_4 . La détermination des constantes d'anisotropie magnétique est faite à partir de l'analyse de stabilité de la densité d'énergie libre (équation 2.10). En déterminant dans quelles conditions $\frac{dE}{d\Phi} = 0$ et $\frac{d^2E}{d\Phi^2} \geq 0$, on peut alors suivre la direction d'équilibre de l'aimantation en fonction des variations de l'intensité du champ extérieur appliqué.

Posons $m = \sin \Phi$, la projection de l'aimantation sur la direction d'application du champ. Les calculs de minimisation de la densité d'énergie libre (annexe A) montrent que $E(\Phi)$ est minimale, quand H est petit, pour les valeurs de m suivantes :

$$m \approx \frac{M_s H}{2(K_u - K_4)} \quad \text{quand } H \rightarrow 0 \quad (2.11)$$

Ainsi pour les très faibles valeurs de champ, m la projection de l'aimantation selon l'axe difficile a un comportement linéaire avec H , ce qui est en total accord avec nos observations expérimentales (figure 2.2.b), pour un champ $H \leq 500$ Oe.

On définit H_u et H_4 , les champs d'anisotropie respectivement uniaxiale et biaxiale par :

$$H_i = \frac{2}{M_s} |K_i| \quad (2.12)$$

avec $i = u$ ou 4 .

Avec $K_u > 0$ et $K_4 < 0$, m peut alors s'écrire sous la forme :

$$m \approx \frac{H}{(H_u + H_4)} \quad (2.13)$$

La pente à l'origine notée s s'écrit avec les équations 2.12 et 2.13 :

$$s \approx \frac{1}{(H_u + H_4)} = \frac{M_s}{2(K_u - K_4)} \quad (2.14)$$

Cependant, la mesure de la pente s pour les faibles valeurs de H ne permet pas de dissocier K_u de K_4 . Deux méthodes d'interprétation du modèle de Stoner-Wohlfarth sont utilisées : la première méthode que nous qualifierons de *classique* [15][16] car elle est la plus ancienne et la seconde plus récente que nous appellerons méthode de Millev [17][18] du nom de son inventeur.

Méthode de détermination *classique* des constantes K_u et K_4

Étant donné la non trivialité du calcul des minima de la densité d'énergie libre, une hypothèse a été faite dans la méthode de détermination *classique* des constantes K_u et K_4 . Une interprétation physique a été donnée aux boucles d'hystérésis observées sur les cycles Kerr avec le champ selon l'axe difficile.

Le point d'inflexion situé en $H = H_{S1}$ est associé à un basculement de l'aimantation de $[\bar{1}\bar{1}0]$ (axe difficile) vers $[1\bar{1}0]$ ou $[\bar{1}10]$ (axe facile) et celui en $H = H_{S2}$ de $[1\bar{1}0]$ ou $[\bar{1}10]$ (axe facile) vers $[110]$ (axe difficile) (figure 2.5). Nous discuterons par la suite de la validité de cette hypothèse. Les calculs permettant d'obtenir K_u et K_4 grâce à la mesure de la pente à l'origine s et H_s (figure 2.5) sont exposés en annexe B et donnent :

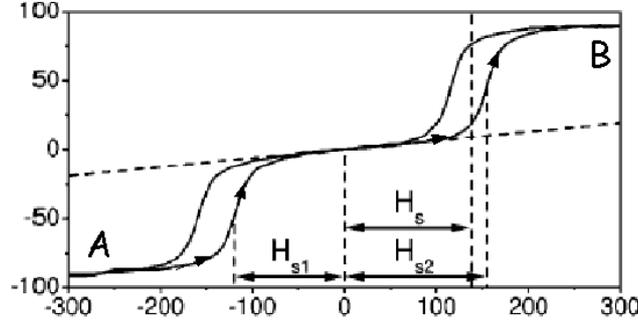


FIG. 2.5: Cycle Kerr obtenu selon l'axe difficile $[110]$ sur des films de cobalt déposé à 80° de la normale sur un substrat de cuivre (001) par Dijken et al..

$$K_u = M_s H_s \quad (2.15)$$

$$K_4 = M_s \left(H_s - \frac{1}{2s} \right) \quad (2.16)$$

Cependant, cette première méthode d'interprétation des cycles Kerr a été remise en cause récemment dans l'article d'Oepen et al. [19]. Nous confirmerons la non validité de cette méthode d'extraction des constantes K_4 et K_u dans le chapitre 6 pour Co/Cu(115) et Co/Cu(1 1 11).

Méthode de détermination dite de Millev des constantes K_u et K_4

Cette méthode est également basée sur le modèle de Stoner-Wohlfarth [14]. Millev et al. déterminent en fonction du champ appliqué l'orientation de l'aimantation pour lesquelles la densité d'énergie (équation 2.10) est minimale. Contrairement à la détermination *classique*, aucune hypothèse supplémentaire n'y est faite.

L'étude des minima de la densité d'énergie libre a été exposée de manière détaillée dans les trois articles de Millev et al. [17][18][19]. Ces calculs permettent d'interpréter le cycle Kerr obtenu selon l'axe difficile et notamment d'expliquer la présence des deux cycles d'hystérésis (figure 2.7). Nous décrirons brièvement dans ce paragraphe, ce qui ressort de cette analyse. La densité d'énergie libre y est exprimée sous la forme

$$E(\Phi) = a \sin^2 \Phi + b \sin^4 \Phi - \vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2.17)$$

En effectuant l'analogie entre les expressions de la densité d'énergie libre 2.10 et 2.17, on exprime a et b en fonction de K_4 et K_u de la manière suivante :

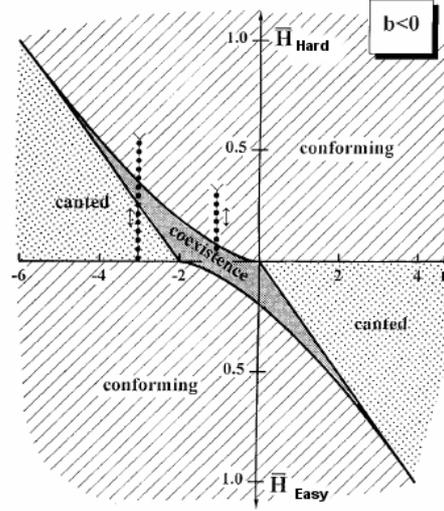


FIG. 2.6: "carte des minima" de la densité d'énergie libre obtenue pour $b < 0$. Les frontières entre les différents domaines représentent les valeurs de \bar{H}_L et \bar{H}_n en fonction de r .

$$a = K_u - K_4 \quad (2.18)$$

$$b = K_4 \quad (2.19)$$

Ces expressions de a et b sont différentes de celles données par Oepen et al. dans la référence [19], car ces auteurs ont considéré que l'axe facile était selon la direction $[110]$ et non selon $[1\bar{1}0]$.

En reprenant les notations utilisées dans l'article d'Oepen et al. [19], on note $r = \frac{a}{b}$ et $\bar{H} = \frac{MH}{8|b|}$. Millev et al. [17][18][19] ont établi "des cartes des minima" en traçant \bar{H} en fonction de r (schéma 2.6), nous ne regardons que "la carte des minima" établie pour $b < 0$ étant donné que dans notre cas $b = K_4 < 0$.

Sur la carte des minima (figure 2.6), pour $b < 0$, un cycle Kerr selon l'axe difficile correspond à un balayage le long de l'axe \bar{H}_{Hard} pour une valeur constante de r (cf. lignes en pointillés sur la figure 2.6) tandis qu'un cycle avec le champ selon l'axe facile $[1\bar{1}0]$ est représenté le long de \bar{H}_{Easy} . Dans cette représentation, on identifie trois types de régime. Le régime noté *conforming* indique que l'aimantation est alignée avec le champ extérieur ce qui correspond à un minimum de la densité d'énergie libre (équation 2.17) lorsque $\Phi = \frac{\pi}{2}$. Dans le régime appelé *canted*, le minimum est obtenu pour une valeur de Φ située entre l'axe facile et l'axe difficile, cet angle augmentant avec l'intensité du champ. La zone dite de *coexistence* indique que les deux types de

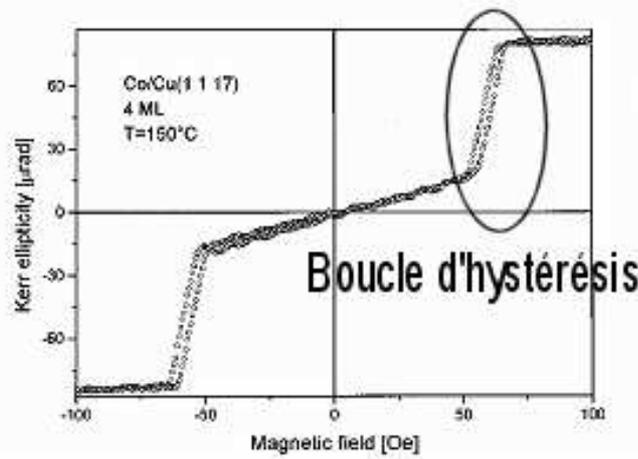


FIG. 2.7: Cycle Kerr obtenus par Wulfhekel et al. pour 4 MC Co/Cu(1 1 17).

régimes (*conforming* et *canted*) cohabitent ce qui signifie que la densité d'énergie libre présente deux minima locaux. La coexistence de ces deux phases est responsable des deux cycles d'hystérésis observés le long de l'axe difficile (schéma 2.7).

Cette étude des minima montre donc qu'il existe trois configurations possibles (*conforming*, *canted* et *coexistence*).

Les endroits de discontinuité de l'aimantation séparant les différents régimes sont déterminés par les expressions suivantes [19] :

$$H_L = -\frac{2(|K_4| - |K_u|)}{M_s} \quad (2.20)$$

$$H_N = \sqrt{\frac{8}{27|K_4|} \frac{(|K_4| + |K_u|)^{3/2}}{M_s}} \quad (2.21)$$

Sur la figure 2.6, \overline{H}_L ($\overline{H}_L = \frac{MH_L}{8|b|}$) et \overline{H}_N ($\overline{H}_N = \frac{MH_N}{8|b|}$) sont tracés en fonction de r , leurs courbes délimitent les différents domaines. La figure 2.8 représente un cycle Kerr théorique obtenu avec une valeur de $r = -3$ pour un balayage du champ extérieur selon l'axe difficile. Les positions de \overline{H}_N et \overline{H}_L sont indiquées sur ce cycle. Il est à noter que sur la figure 2.8, seule la partie du cycle avec $H > 0$ est représentée, la partie $H < 0$ étant son symétrique par rapport à l'origine.

De manière pratique, les constantes K_4 et K_u sont calculées à partir des cycles obtenus en appliquant le champ extérieur selon l'axe difficile. Les cycles que nous avons obtenu sur Co/Cu(115) et Co/Cu(1 1 11) selon l'axe difficile ont typiquement une forme similaire à celle du graphe 2.9. Il est à noter que dans ce type de cycle $H_L \approx H_N$, ce qui signifie que la région de coexistence est très restreinte et que nous

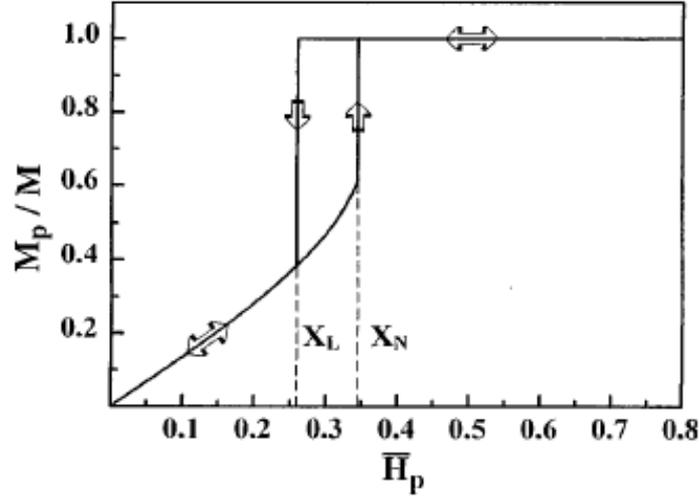


FIG. 2.8: Simulation d'un cycle Kerr obtenue pour $b < 0$ quand le champ varie selon les pointillés pour $r = -3$ sur la "carte des minima". Les flèches indiquent le changement de sens de balayage du champ extérieur. X_L et X_N représentent respectivement \overline{H}_L et \overline{H}_N . Seule la partie $H > 0$ du cycle a été représentée, la partie $H < 0$ étant son symétrique par rapport à l'origine.

nous trouvons par conséquent à des valeurs de r inférieures à -2 comme l'indique la "carte des minima". Grâce à deux mesures sur le cycle Kerr, la pente à champ nul et H_L , il est alors aisé de déterminer K_4 et K_u .

Avec la mesure de la pente à champ nul, est déterminée la valeur de H_k . H_k est défini comme étant le champ extérieur auquel le système serait saturé si l'axe difficile avait un comportement parfaitement difficile c'est à dire sans contribution biaxiale. La mesure de H_k est faite en calculant l'intersection de la pente à champ nul avec la droite représentant l'ellipticité à saturation (figure 2.9). D'après l'équation 2.13, la pente s à champ nul est égale à :

$$s = \frac{1}{(H_u + H_4)} \quad (2.22)$$

Ainsi l'intersection de cette droite avec le cycle à saturation s'effectue en $H = H_k$ avec

$$H_k = H_u + H_4 \quad (2.23)$$

et permet de déterminer la valeur de $(H_u + H_4)$.

La seconde détermination expérimentale est la mesure de H_L . Pour $H = H_L$, la courbe de l'ellipticité présente un point d'inflexion; on détermine donc la valeur de H_L grâce à la dérivation de cette courbe en fonction de l'intensité du champ appliqué.

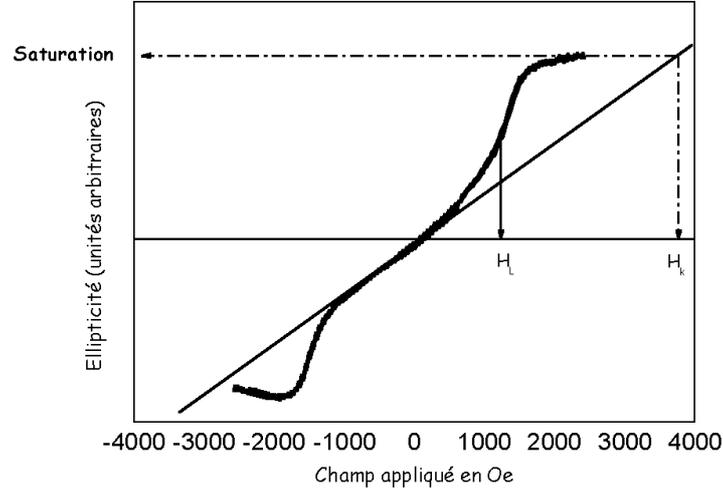


FIG. 2.9: Exemple de détermination de H_k et H_L sur un cycle Kerr avec le champ selon l'axe difficile obtenu sur un film de 8 monocouches de cobalt déposé sur Cu(115).

Grâce à l'expression 2.20, la valeur de H_L permet d'obtenir une seconde relation entre H_u et H_4 .

Après la mesure de H_k et H_L et avec les équations 2.20 et 2.23, on obtient :

$$H_u = \left(\frac{H_k + H_L}{2} \right) \quad (2.24)$$

$$H_4 = \left(\frac{H_k - H_L}{2} \right) \quad (2.25)$$

Et finalement

$$|K_u| = \frac{M_s}{4} (H_k + H_L) \quad (2.26)$$

$$|K_4| = \frac{M_s}{4} (H_k - H_L) \quad (2.27)$$

D'après les mesures de Bland et al., le moment magnétique du cobalt déposé sur Cu(001) est identique à celui du cobalt massif ($M_s = 1422$ Oe) [20]. Pour nos calculs, nous supposons que cette valeur est identique pour les dépôts de cobalt effectués sur une surface vicinale de cuivre.

Plan de rotation de l'aimantation	H_4	H_u
(001)	$0,5(H_k - H_L)$	$0,5(H_k - H_L)$
(1 1 11)	$0,502(H_k - H_L)$	$0,515H_k + 0,510H_L$
(115)	$0,511(H_k - H_L)$	$0,577H_k + 0,551H_L$

TAB. 2.1: Tableau récapitulant les calculs de H_4 et H_u lorsque le retournement s'effectue dans le plan (001), (1 1 11) ou (115).

Dans l'équation 2.9, on suppose que le champ appliqué est dans le plan des terrasses (plan (001)) et que le retournement de l'aimantation \vec{M} s'effectue dans ce même plan. Or expérimentalement, \vec{H} se situe dans le plan (11n) (avec $n = 11$ pour Cu(1 1 11) et $n = 5$ pour Cu(115)) qui fait un angle α avec le plan des terrasses (001) ($\alpha_{Cu(115)} = 15,79^\circ$ et $\alpha_{Cu(1 1 11)} = 7,32^\circ$). La question est alors de savoir si le retournement de l'aimantation s'effectue dans le plan des terrasses ou dans le plan (11n). Le terme dominant de l'anisotropie est l'anisotropie dipolaire. Nous avons vu précédemment que cette anisotropie avait tendance à ramener l'aimantation dans le plan du film. Étant donné que la surface de cobalt est composée de terrasses qui sont accolées les unes aux autres c'est à dire des éléments non isolés magnétiquement, le champ démagnétisant a alors tendance à être selon la direction normale à cet ensemble i.e. la direction [11n] et il maintient l'aimantation dans le plan optique (11n) de la surface et non dans le plan des terrasses. Ainsi on peut considérer que le processus de retournement s'effectue dans le plan (11n). En tenant compte de cette supposition, nous avons recalculé les expressions de a et b pour une rotation de l'aimantation dans le plan (115) et (1 1 11). Les expressions de H_4 et H_u en résultant sont exposées dans le tableau 2.1 et les calculs sont présentés rapidement en annexe C.

D'après les résultats situés dans le tableau 2.1, les expressions de H_4 et H_u sont très peu différentes entre un renversement de l'aimantation supposé dans le plan (001) des terrasses ou dans un plan (11n). Ainsi dans notre cas, le fait de prendre un modèle de retournement de l'aimantation dans le plan des terrasses engendre une faible imprécision sur la détermination de H_4 et H_u qui est de l'ordre de grandeur de l'incertitude de mesure des valeurs de H_k et H_L .

2.3 Estimation des constantes d'anisotropie

Nous avons vu au début de ce chapitre que l'anisotropie magnétique pouvait être due à des origines diverses comme des relaxations de structure, la morphologie des dépôts ou bien encore au fait que les atomes de surface aient une coordinence réduite. Les deux modèles phénoménologiques que nous allons décrire dans ce paragraphe sont

le modèle magnétoélastique et le modèle de Néel.

Nous avons vu dans le paragraphe 2.1 que la densité d'énergie d'anisotropie E_a était la somme de différentes contributions :

$$E_a = E_d + E_{mcV} + \frac{E_{mcSI}}{d} + E_{me} \quad (2.28)$$

D'après le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth, cette densité d'énergie d'anisotropie E_a est représentée par l'expression suivante lorsque \vec{M} est dans le plan (11n) (annexe C) :

$$E_a(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + \left(\frac{1}{4} + \left(-\frac{1}{2} - \frac{\cos^2 \alpha}{2} + \sin^2 \alpha \right) \sin^2 \Phi \right) K_4 \\ + K_4 \left(\frac{1}{4} + \frac{\cos^4 \alpha}{4} + \frac{\cos^2 \alpha}{2} - \sin^2 \alpha + \sin^2 \alpha \cos^2 \alpha \right) \sin^4 \Phi \quad (2.29)$$

avec Φ l'angle entre l'aimantation et l'axe facile $[1\bar{1}0]$ et α l'angle formé entre le plan (001) et (11n). \vec{M} est considérée dans le plan (11n) car premièrement le champ démagnétisant sur de tels dépôts est plutôt selon la direction [11n] ainsi l'énergie dipolaire force l'aimantation dans le plan (11n) et deuxièmement expérimentalement le champ appliqué est selon $[nn\bar{2}]$ et non selon [110] (direction difficile).

Les constantes d'anisotropie sont des constantes effectives prenant en compte les différentes origines de l'anisotropie magnétique ainsi $K_u = K_u^d + K_u^{mcV} + \frac{K_u^{mcSI}}{d} + K_u^{me}$.

D'après l'équation 2.29, K_u peut être déterminée en effectuant la différence de densité d'énergie d'anisotropie avec l'aimantation selon l'axe difficile ($\vec{M} // [nn\bar{2}]$, $\Phi = \frac{\pi}{2}$) et celle avec \vec{M} selon l'axe facile ($\vec{M} // [1\bar{1}0]$, $\Phi = 0$) :

$$K_u = E_a(\vec{M} // [nn\bar{2}]) - E_a(\vec{M} // [1\bar{1}0]) \quad (2.30)$$

Finalement, on obtient :

$$K_u = E_a\left(\Phi = \frac{\pi}{2}\right) - E_a(\Phi = 0) \quad (2.31)$$

2.3.1 Modèle magnétoélastique

Nous allons évaluer dans ce paragraphe la contribution d'origine magnétoélastique K_u^{ME} de l'anisotropie uniaxiale.

Nous déterminons la contribution magnétoélastique K_u^{me} grâce à l'expression (équation 2.30) :

$$K_u^{ME} = E_{me}(\vec{M} // [nn\bar{2}]) - E_{me}(\vec{M} // [1\bar{1}0]) \quad (2.32)$$

La densité d'énergie d'anisotropie magnétoélastique E_{me} d'un système cubique est souvent représentée phénoménologiquement par l'expression :

$$E_{me} = B_1 (\varepsilon_{11}\alpha_1^2 + \varepsilon_{22}\alpha_2^2 + \varepsilon_{33}\alpha_3^2) + 2B_2 (\varepsilon_{12}\alpha_1\alpha_2 + \varepsilon_{13}\alpha_1\alpha_3 + \varepsilon_{23}\alpha_2\alpha_3) + \dots \quad (2.33)$$

où B_1 et B_2 sont les constantes magnétoélastiques, ε le tenseur des déformations et les α_i sont les cosinus directeurs de l'aimantation dans le repère ([100] [010] [001]).

Afin de calculer K_u^{me} , il suffit de déterminer les cosinus directeurs de l'aimantation \vec{M} dans le repère ([100] [010] [001]) et de calculer le tenseur des déformations ε à partir des résultats structuraux obtenus en EXAFS de surface.

Ainsi en utilisant la formule 2.73 donnée en annexe C, on obtient :

$$\begin{aligned} E_{me} \left(\vec{M} // [nn\bar{2}] \right) &= B_1 \left(\varepsilon_{11} \frac{\cos^2 \alpha}{2} + \varepsilon_{22} \frac{\cos^2 \alpha}{2} + \varepsilon_{33} \sin^2 \alpha \right) \\ &+ 2B_2 \left(\varepsilon_{12} \frac{\cos^2 \alpha}{2} - \varepsilon_{13} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \alpha \cos \alpha \right) \\ &- 2B_2 \left(\varepsilon_{23} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \alpha \cos \alpha \right) \end{aligned} \quad (2.34)$$

$$\text{et } E_{me} \left(\vec{M} // [1\bar{1}0] \right) = B_1 \left(\frac{\varepsilon_{11}}{2} + \frac{\varepsilon_{22}}{2} \right) - B_2 \varepsilon_{12} \quad (2.35)$$

avec α l'angle formé entre le plan (001) et le plan (11n).

On obtient alors K_u^{me} :

$$K_u^{me} = B_1 \sin^2 \alpha \left(\varepsilon_{33} - \frac{\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22}}{2} \right) - 2B_2 \left(\frac{\varepsilon_{12}}{2} \sin^2 \alpha + (\varepsilon_{13} + \varepsilon_{23}) \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \alpha \cos \alpha \right) \quad (2.36)$$

Les valeurs de B_1 et B_2 (constantes magnétoélastiques) utilisées sont celles déterminées par Sanders $B_1 = -9, 2.10^7 \text{erg.cm}^{-3}$ et $B_2 = 7, 7.10^7 \text{erg.cm}^{-3}$ [21].

Seuls restent à déterminer les éléments du tenseur des déformations, ils seront calculés d'après les résultats structuraux d'EXAFS de surface :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.37)$$

u_i est la coordonnée du vecteur déformation dans la direction i et x_i la coordonnée du point selon i où s'effectue la déformation.

En conclusion, l'anisotropie magnétoélastique déterminée avec ce modèle sera dépendante de la structure cristallographique et elle sera une composante de volume de la constante d'anisotropie uniaxiale (K_u^V) (formule 2.8).

2.3.2 Modèle de Néel

Le modèle phénoménologique de Néel permet d'estimer l'anisotropie magnétique qu'induisent la surface et l'interface par leur dissymétrie notamment l'effet des liaisons manquantes pour la surface. Nous déterminons ainsi l'anisotropie magnétocristalline de surface et d'interface, contribution que nous avons notée E_{mcSI} dans l'expression de la densité d'anisotropie E_a (équation 2.28).

L'énergie d'anisotropie de Néel e_{mcSI}^i créée par l'atome i s'écrit :

$$e_{mcSI}^i = \sum_j \text{voisins de } i (l_j + m_j \delta r_{ij}) \left[\cos^2 \theta_{ij} - \frac{1}{3} \right] \quad (2.38)$$

e_{mcSI}^i est une somme sur les j voisins de l'atome i . Dans notre cas, nous étendons cette somme uniquement sur les premiers voisins de l'atome i .

θ_{ij} est l'angle entre la liaison ij et l'aimantation \vec{M} située dans le plan (11n).

l_j et m_j sont des coefficients qui dépendent du matériau et qui s'expriment en fonction des constantes magnétoélastiques B_1 et B_2 . Le terme $m_j \delta r_{ij}$ permet d'introduire dans ce modèle l'anisotropie magnétoélastique créée par les contraintes structurales mesurées à la surface et à l'interface. $\delta r_{ij} = (r_{contraint}^{ij} - r_{massif}^{ij})$ avec $r_{contraint}^{ij}$ la longueur de la liaison entre les atomes i et j et r_{massif}^{ij} la distance entre i et j lorsque le matériau a sa structure massive non contrainte.

Nous utilisons le modèle de Néel pour calculer la contribution à l'anisotropie de la surface et de l'interface. Étant donné que le terme volumique magnétoélastique a été traité dans le paragraphe précédent (K_u^{me}), nous négligerons le terme $m_j \delta r_{ij}$. Pour justifier cette simplification, nous pouvons également ajouter que ce terme $m_j \delta r_{ij}$ est 20 fois plus petit que l_j et pourra donc être négligeable pour l'anisotropie de surface.

Afin de déterminer la contribution de la surface et de l'interface, il faut effectuer la somme de l'équation 2.38 sur tous les atomes les constituant. Ainsi la densité d'énergie de Néel ε_{mcSI} par atome s'écrit :

$$\varepsilon_{mcSI} (\text{erg/atome}) = \frac{1}{P} \sum_{\text{atomes de surface-interface}}^P \left(\frac{e_{mcSI}^i}{2} \right) \quad (2.39)$$

P étant le nombre d'atomes sur lesquels s'effectue la somme. Le facteur $\frac{1}{2}$ évite de compter les liaisons deux fois.

Exprimons cette densité d'énergie par unité de surface :

$$E_{mcSI} (\text{erg.cm}^{-2}) = ds \frac{1}{P} \sum_{\text{atomes de surface-interface}}^P \left(\frac{e_{mcSI}^i}{2} \right) \quad (2.40)$$

avec d_s la densité surfacique d'atomes de cobalt dans sa structure cubique à faces centrées.

$$E_{mcSI} \text{ (erg.cm}^{-2}\text{)} = \underbrace{d_s l_{Co}^s}_{l_{Co}^s} \frac{1}{2P} \sum_{\text{atomes de surface}}^P \sum_j \left(\cos^2 \theta_{ij} - \frac{1}{3} \right) \quad (2.41)$$

avec $l_{Co}^s = d_s l_{Co}$. Dans la formule 2.41, nous n'avons pas tenu compte de l'interface cobalt-cuivre, nous avons uniquement effectué la somme sur la surface de cobalt présentant des marches. La contribution du rôle joué par l'interface sera évaluée dans le chapitre 9.

Le terme l_{Co} a été calculé par H. Bulou [22] à partir des valeurs de B_1 et B_2 de la référence [21]. $l_{Co} = -455,47 \mu\text{eV/atome}$ et par conséquent $l_{Co}^V = l_{Co} \times d_V = -6,52.10^7 \text{erg.cm}^{-3}$ et $l_{Co}^s = l_{Co} \times d_s = -1,12 \text{erg.cm}^{-2}$ avec d_V respectivement (d_s) la densité volumique (surfacique) du cobalt dans sa structure cubique faces centrées.

Afin de déterminer la contribution de l'anisotropie de Néel à l'anisotropie uniaxiale K_u , nous avons procédé de la même manière qu'au paragraphe 2.3.1. Comme la densité d'énergie d'anisotropie s'écrit :

$$E_a = E_d + E_{mcV} + \frac{E_{mcSI}}{d} + E_{me} \quad (2.42)$$

Ainsi

$$K_u^{mcSI} = \left(E_{mcSI} \left(\vec{M} // [n\bar{n}\bar{2}] \right) - E_{mcSI} \left(\vec{M} // [1\bar{1}0] \right) \right) \quad (2.43)$$

Il est à noter que K_u^{mcSI} est homogène à une contribution de surface K_u^s (formule 2.8) et s'exprime en erg.cm^{-2} .

Cas des marches droites

Dans le cas des marches droites, aussi bien sur la surface (115) que sur (1 1 11), il y a trois catégories d'atomes contribuant à l'anisotropie de Néel de surface : les atomes en site A sommet de la marche, ceux en site C creux de la marche et les atomes en site S en surface (Schéma 2.10).

On note A_i l'expression suivante :

$$A_i = \sum_j \left(\cos^2 \theta_{ij} - \frac{1}{3} \right)_{\vec{M} // [n\bar{n}\bar{2}]} - \sum_j \left(\cos^2 \theta_{ij} - \frac{1}{3} \right)_{\vec{M} // [1\bar{1}0]} \quad (2.44)$$

Les valeurs de A_i pour chaque site sont dans le tableau 2.2.

Ainsi K_u^{mcSI} s'exprime :

$$K_u^{mcSI} = \frac{l_{Co}^s}{2P} \sum_i^P A_i \quad (2.45)$$

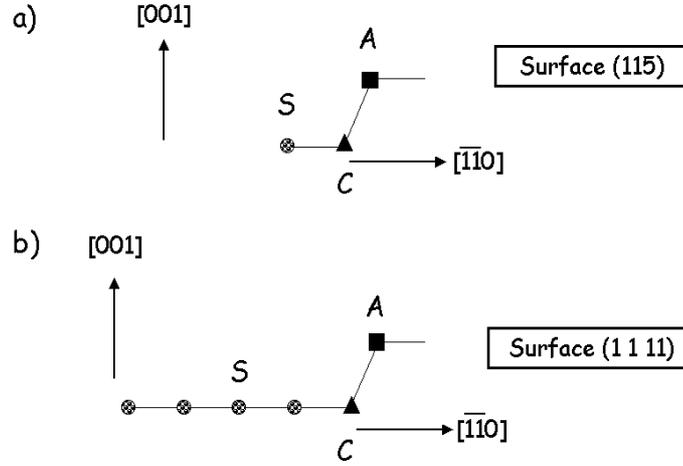


FIG. 2.10: Schéma représentant les trois catégories de sites atomiques donnant une contribution différente à l'anisotropie de Néel sur les surfaces (115) et (1 1 1).

Catégorie d'atomes	$A_{iCu(1\ 1\ 11)}$ Liaisons dans le plan (001)	$A_{iCu(1\ 1\ 11)}$ Liaisons hors du plan (001)	$A_{iCu(1\ 1\ 5)}$ Liaisons dans le plan (001)	$A_{iCu(1\ 1\ 5)}$ Liaisons hors du plan (001)
Atome A	-1,01623	0,01623	-1,07405	0,07403
Atome C	-0,03247	0,20306	-0,14811	0,48134
Atome S	-0,03247	0,01623	-0,14811	0,07403

TAB. 2.2: Tableau regroupant les valeurs de A_i des différents sites atomiques pour Cu(1 1 11) et Cu(115) en séparant la somme sur les liaisons dans le plan (001) des liaisons hors de ce plan.

La surface de cobalt sur la surface vicinale Cu(1 1 11) peut être totalement représentée par un atome en site A, un atome en site C et 4 atomes en site S. Sur Cu(115), elle est représentée par un atome A, un atome C et un atome S. On obtient comme expression de l'anisotropie de surface $K_u^{mcS}(Cu(1\ 1\ 11))$ et $K_u^{mcS}(Cu(115))$:

$$K_u^{mcS}(Cu(1\ 1\ 11)) = \frac{1}{2} \left[\frac{l_{Co}^s \times (A_A + A_C + 4 \times A_S)}{6} \right] \quad (2.46)$$

$$K_u^{mcS}(Cu(115)) = \frac{1}{2} \left[\frac{l_{Co}^s \times (A_A + A_C + A_S)}{3} \right] \quad (2.47)$$

En utilisant les valeurs de A_i du tableau 2.2, on a :

$$K_u^{mcS}(Cu(1\ 1\ 11)) = -0,0745\ l_{Co}^s = 0,0834\ \text{erg.cm}^{-2} \quad (2.48)$$

et

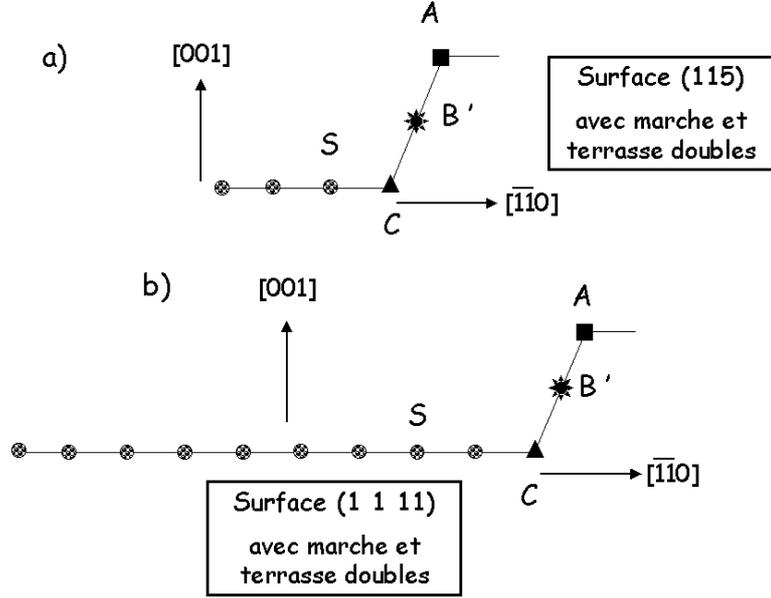


FIG. 2.11: Schéma de surface (1 1 1 1) et (1 1 5) ayant des terrasses doubles et une hauteur de marche double avec les différents sites atomiques.

$$K_u^{mcS}(Cu(115)) = -0,1234 l_{Co}^s = 0,138 \text{ erg.cm}^{-2} \quad (2.49)$$

Cas des marches doubles avec terrasses doubles

Nous verrons par la suite sur les images obtenues par microscopie à effet tunnel que sur les dépôts de 8 MC de cobalt sur Cu(1 1 1 1) la surface de cobalt s'organise différemment de celle du cuivre (1 1 1 1). En effet, les terrasses semblent quasiment deux fois plus larges ce qui implique une hauteur de marche double pour conserver l'orientation (1 1 1 1) de la surface. Grâce à la figure 2.11, il est alors aisé de visualiser les différents sites atomiques engendrés par des terrasses doubles séparées par une marche double. On a :

$$K_u^{mcS}(Cu(1 1 1 1))_{\text{double marche}} = \frac{1}{2} \left[\frac{l_{Co}^s \times (A_A + A_C + A_{B'} + 9 \times A_S)}{12} \right] \quad (2.50)$$

$$K_u^{mcS}(Cu(1 1 5))_{\text{double marche}} = \frac{1}{2} \left[\frac{l_{Co}^s \times (A_A + A_C + A_{B'} + 3 \times A_S)}{6} \right] \quad (2.51)$$

En prenant les valeurs du tableau 2.3, on retrouve les mêmes valeurs de K_u^{mcS} obtenues pour les marches simples (1 1 1 1) et (1 1 5).

Cas des marches ondulées

Les résultats de microscopie à effet tunnel montrent également que le réseau de marches se réorganise pendant le dépôt de cobalt et que les bords de marche présentent des crans. Nous allons calculer avec le modèle de Néel, l'anisotropie de surface que produisent ces ondulations de bord de marche. Les figures 2.12 et 2.13 permettent de visualiser les différents sites atomiques contribuant à l'anisotropie de surface lorsque les marches présentent des crans simples ou des crans doubles. Le tableau 2.3 récapitule les valeurs de A_i de chacun des sites. Les calculs de K_u^{mcS} qui tiennent compte de ces crans sont développés en annexe D et la formulation générale de K_u^{mcS} s'écrit pour les deux surfaces vicinales étudiées :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,0745 l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,178}{6 \times N} \right) \quad (2.52)$$

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 5)_{\text{cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,1234 l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,203}{3 \times N} \right) \quad (2.53)$$

Si maintenant le cran est double, on obtient sur une surface (1 1 11) :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{double cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,0745 l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{2,298}{6 \times N} \right) \quad (2.54)$$

Les détails du calcul sont présentés dans l'annexe D. Ainsi, le fait d'avoir un double cran tous les N atomes (équation 2.54) est presque équivalent à deux crans sur une période de N atomes (équation 2.52).

Finalement, on montre que la présence de crans simple ou double sur (115) ou (1 1 11) diminue l'anisotropie de surface ($l_{Co}^s < 0$). K_u^{mcS} est d'autant plus diminuée que les crans sont rapprochés.

Le modèle de Néel est un outil permettant de déterminer la contribution de la surface à l'anisotropie magnétique. En incluant des marches et des crans le long des bords de marches, on montre leur influence sur l'anisotropie. Nous avons montré que la surface (115) apporte une contribution 1,6 fois plus importante à l'anisotropie que (1 1 11) et que les crans le long des bords de marches diminuent l'anisotropie. De plus, puisque que la présence de double et simple marche donne des contributions identiques, on montre ainsi que le facettage ne modifiera pas l'anisotropie de surface (il y a conservation du nombre de marches).

2.4 Conclusion

La magnéto-optique est un outil performant de caractérisation magnétique des films minces et notamment de mesure d'éventuelles anisotropies magnétiques. Ce cha-

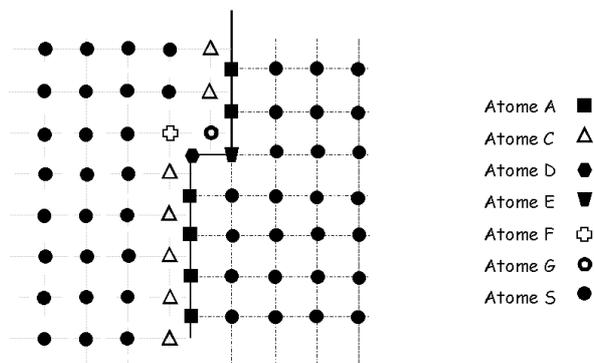


FIG. 2.12: Schéma présentant un simple cran et les différents sites atomiques qu'il génère.

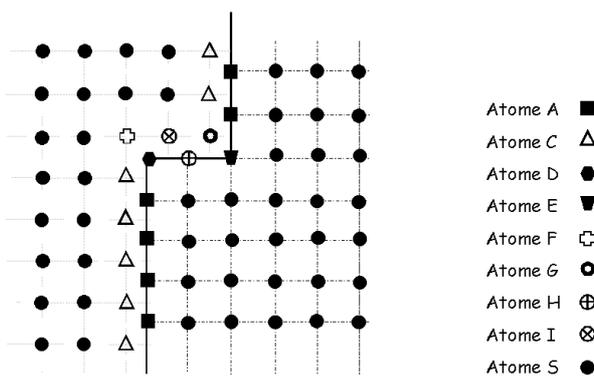


FIG. 2.13: Schéma présentant un double cran et les différents sites atomiques qu'il génère.

Catégorie d'atomes	$\mathbf{A}_{iCu(1\ 1\ 11)}$ Liaisons dans le plan (001)	$\mathbf{A}_{iCu(1\ 1\ 11)}$ Liaisons hors du plan (001)	$\mathbf{A}_{iCu(1\ 1\ 5)}$ Liaisons dans le plan (001)	$\mathbf{A}_{iCu(1\ 1\ 5)}$ Liaisons hors du plan (001)
Atome A	-1,01623	0,01623	-1,07405	0,07403
Atome C	-0,03247	0,20306	-0,14811	0,48134
Atome S	-0,03247	0,01623	-0,14811	0,07403
Atome B'	-1,01623	0,20306	-1,07405	0,48134
Atome D	-0,01623	0,01623	-0,07405	0,07403
Atome E	-0,03247	0,01623	-0,14811	0,07403
Atome F	-0,03247	0,19494	-0,14811	0,27768
Atome G	-0,03247	0,20306	-0,14811	0,48134
Atome H	0,96753	0,01623	0,90971	0,07403
Atome I	-0,03247	0,02434	-0,14811	0,11104

TAB. 2.3: Tableau récapitulant les valeurs de A_i pour chaque site atomique observé sur les surfaces Cu(1 1 11) et Cu(115) en séparant la somme sur les liaisons dans le plan (001) des liaisons hors de ce plan.

pitre consacré au magnétisme nous a permis dans une première partie de récapituler de manière succincte les différents phénomènes physiques pouvant engendrer des anisotropies magnétiques.

Les mesures magnéto-optiques par effet Kerr nous seront essentielles dans la détermination de l'anisotropie magnétique. Cette technique est un outil permettant d'étudier les processus de retournement de l'aimantation lorsqu'un champ extérieur est appliqué dans une direction donnée.

Un modèle de rotation cohérente de l'aimantation type Stoner-Wohlfarth, permet grâce aux mesures de cycles Kerr selon l'axe de difficile aimantation de déterminer les constantes d'anisotropie magnétique biaxiale et uniaxiale (K_4 et K_u).

Cependant, il faut être prudent dans l'exploitation de ces résultats, en effet, ce modèle suppose que le retournement de l'aimantation s'effectue de manière cohérente ce qui exclut la présence de domaines magnétiques et ce qui peut être parfois peu réaliste.

2.5 Annexe

2.5.1 Annexe A

Nous donnons ici les détails du calcul de minimisation de la densité d'énergie libre en appliquant le champ extérieur dans la direction de difficile aimantation [110] :

$$E(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + \frac{K_4}{4} \cos^2 2\Phi - M_s H \sin \Phi \quad (2.55)$$

$$\frac{\partial E(\Phi)}{\partial \Phi} = 2K_u \sin \Phi \cos \Phi - K_4 \cos 2\Phi \sin 2\Phi - M_s H \cos \Phi = 0 \quad (2.56)$$

Exprimons cette expression en fonction de $m = \sin \Phi$, m représente la projection de l'aimantation selon l'axe [110], direction d'application du champ.

$$\sqrt{1 - m^2} (-2K_u m + 2K_4 m (2m^2 - 1) + M_s H) = 0 \quad (2.57)$$

La solution triviale de cette équation observée pour $m = 1$ ($\Phi = 0$) correspond à un maximum. Les solutions minimisant $E(\Phi)$ sont obtenues pour des valeurs de m telles que :

$$m = \frac{M_s H}{2(K_u + K_4(2m^2 - 1))} \quad (2.58)$$

Comme nous l'avons vu précédemment, étant donné que l'effet Kerr est au premier ordre proportionnel à l'aimantation, les cycles Kerr représentent une mesure de l'aimantation dans la direction [110]. Ainsi pour les faibles intensités de champ, m la composante de l'aimantation selon la direction difficile est petite, on peut écrire :

$$m \approx \frac{M_s H}{2(K_u - K_4)} \quad (2.59)$$

L'expression 2.59, nous montre que pour les champs faibles, m la composante de l'aimantation selon la direction difficile croît linéairement en fonction de l'intensité de H . Ainsi la mesure de la pente observée expérimentalement à champ nul sur les cycles Kerr, nous permettra de déterminer $K_u - K_4$.

2.5.2 Annexe B

Dans ce paragraphe, nous détaillerons la méthode *classique* de détermination de K_u et de K_4 . Cette méthode fait l'hypothèse que les sauts observés sur le cycle Kerr lorsque le champ est appliqué le long de l'axe difficile sont dus à un basculement de l'aimantation de l'axe difficile vers l'axe facile et *vice versa*.

En utilisant la formule décrivant la densité d'énergie libre 2.10, avec le champ extérieur appliqué dans la direction de l'axe difficile, on obtient :

$$E_{[\bar{1}\bar{1}0]} = K_u + \frac{K_4}{4} + H M_s \quad (2.60)$$

$$E_{[1\bar{1}0]} = \frac{K_4}{4} \quad (2.61)$$

$$E_{[\bar{1}10]} = \frac{K_4}{4} \quad (2.62)$$

$$E_{[110]} = K_u + \frac{K_4}{4} - HM_s \quad (2.63)$$

La quantité de densité d'énergie libre $\Delta\epsilon$ pour basculer l'aimantation de l'axe $[\bar{1}\bar{1}0]$ vers $[1\bar{1}0]$ ou $[\bar{1}10]$ s'écrit d'après les équations 2.60, 2.61 et 2.62 :

$$\Delta\epsilon = K_u + HM_s \quad (2.64)$$

Ce basculement est repéré pour $H = H_{s1}$ sur la figure 2.5, ainsi

$$H_{s1} = \frac{\Delta\epsilon - K_u}{M_s} \quad (2.65)$$

Le basculement de l'axe facile $[1\bar{1}0]$ ou $[\bar{1}10]$ vers $[110]$ s'effectue pour $\Delta\epsilon = HM_s - K_u$ il est repéré par $H = H_{s2}$. On a alors :

$$H_{s2} = \frac{\Delta\epsilon + K_u}{M_s} \quad (2.66)$$

En combinant les équations 2.65 et 2.66, on obtient :

$$K_u = \frac{M_s(H_{s2} - H_{s1})}{2} \quad (2.67)$$

En introduisant H_s dans 2.67, H_s étant le milieu des boucles d'hystérésis (figure 2.5), finalement on a :

$$K_u = M_s H_s \quad (2.68)$$

De plus, puisque s la pente à l'origine est égale à $\left(\frac{M_s}{2(K_u - K_4)}\right)$, K_4 s'exprime sous la forme :

$$K_4 = M_s \left(H_s - \frac{1}{2s} \right) \quad (2.69)$$

2.5.3 Annexe C

Nous calculons dans cette annexe, l'expression de la densité de l'énergie libre lorsque la rotation de l'aimantation s'effectue non plus dans le plan (001), mais dans un plan de type (11n).

De manière générale, la densité d'énergie libre s'écrit :

$$E(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + K_4 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2) - \vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2.70)$$

avec α_i les cosinus directeurs de l'aimantation c'est à dire la projection de $\frac{\vec{M}}{M} = \vec{m}$ dans le repère cristallographique du système étudié. Nous allons donc calculer la projection de \vec{m} dans le repère cubique ($[100]$, $[010]$, $[001]$).

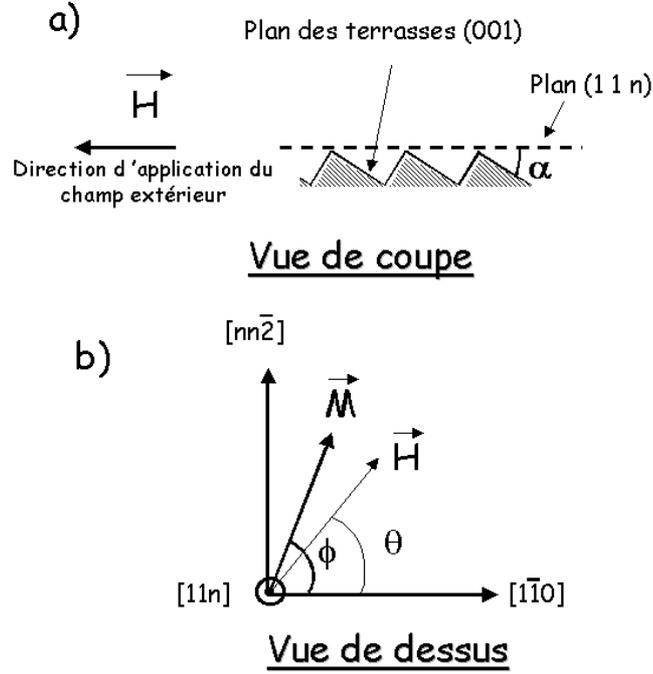


FIG. 2.14: Schéma récapitulant les différents angles utilisés lors du calcul de la densité d'énergie libre lorsque l'aimantation tourne dans le plan (11n).

Voici l'expression de l'aimantation dans le plan (11n) d'après le repère de la figure 2.14.b.

$$\vec{m} = \begin{pmatrix} \cos \Phi \\ \sin \Phi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.71)$$

L'expression de \vec{m} dans le repère $([100][010][001])$ est :

$$\vec{m}_{cubique} = \begin{pmatrix} \cos \frac{\pi}{4} & \sin \frac{\pi}{4} & 0 \\ -\sin \frac{\pi}{4} & \cos \frac{\pi}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \alpha & \sin \alpha \\ 0 & -\sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \Phi \\ \sin \Phi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.72)$$

avec α l'angle entre le plan (11n) et le plan (001). $\vec{m}_{cubique}$ s'exprime encore par :

$$\vec{m}_{cubique} = \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \cos \Phi + \frac{\sqrt{2}}{2} \cos \alpha \sin \Phi \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \cos \Phi + \frac{\sqrt{2}}{2} \cos \alpha \sin \Phi \\ -\sin \alpha \sin \Phi \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \end{pmatrix} \quad (2.73)$$

Ainsi, on obtient les produits au carré des cosinus directeurs :

$$\alpha_1^2 \alpha_2^2 = \frac{1}{4} (\cos^2 \Phi - \cos^2 \alpha \sin^2 \Phi) \quad (2.74)$$

$$\alpha_1^2 \alpha_3^2 = \left(\frac{\cos^2 \Phi}{2} + \frac{\cos^2 \alpha \sin^2 \Phi}{2} + \cos \alpha \cos \Phi \sin \Phi \right) (\sin^2 \alpha \sin^2 \Phi) \quad (2.75)$$

$$\alpha_2^2 \alpha_3^2 = \left(\frac{\cos^2 \Phi}{2} + \frac{\cos^2 \alpha \sin^2 \Phi}{2} - \cos \alpha \cos \Phi \sin \Phi \right) (\sin^2 \alpha \sin^2 \Phi) \quad (2.76)$$

En exprimant la densité d'énergie libre uniquement en fonction de $\sin \Phi$, finalement on a :

$$E(\Phi) = K_u \sin^2 \Phi + \left(\begin{array}{l} \frac{1}{4} + \left(-\frac{1}{2} - \frac{\cos^2 \alpha}{2} + \sin^2 \alpha \right) \sin^2 \Phi + \\ \left(\frac{1}{4} + \frac{\cos^4 \alpha}{4} + \frac{\cos^2 \alpha}{2} - \sin^2 \alpha + \sin^2 \alpha \cos^2 \alpha \right) \sin^4 \Phi \end{array} \right) K_4 - \vec{H} \cdot \vec{M} \quad (2.77)$$

En faisant l'analogie entre les équations 2.77 et 2.17, on obtient comme expressions de a et de b :

$$a = \left(-\frac{1 + \cos^2 \alpha}{2} + \sin^2 \alpha \right) K_4 + K_u \quad (2.78)$$

$$b = \left(\frac{1 + \cos^4 \alpha}{4} + \frac{\cos^2 \alpha}{2} - \sin^2 \alpha + \sin^2 \alpha \cos^2 \alpha \right) K_4 \quad (2.79)$$

En appliquant les valeurs de α pour le plan (115) et le plan (1 1 11), on a :

Plan de rotation de \vec{M}	a	b
(115)	$K_u - 0.889K_4$	$0.9218K_4$
(1 1 11)	$K_u - 0.975K_4$	$0.9835K_4$
(001)	$K_u - K_4$	K_4

(2.80)

Après comparaison avec les valeurs de a et b obtenues pour un retournement de \vec{M} dans le plan (001), on note que le fait de considérer que la rotation s'effectue dans un plan type (11n) n'engendre pas de grand changement pour les surfaces (115) et (1 1 11).

2.5.4 Annexe D

Nous allons dans cette annexe calculer, grâce au modèle de Néel, l'anisotropie engendrée par la formation d'un cran simple ou double le long d'une marche pour des surfaces (1 1 11) et (115).

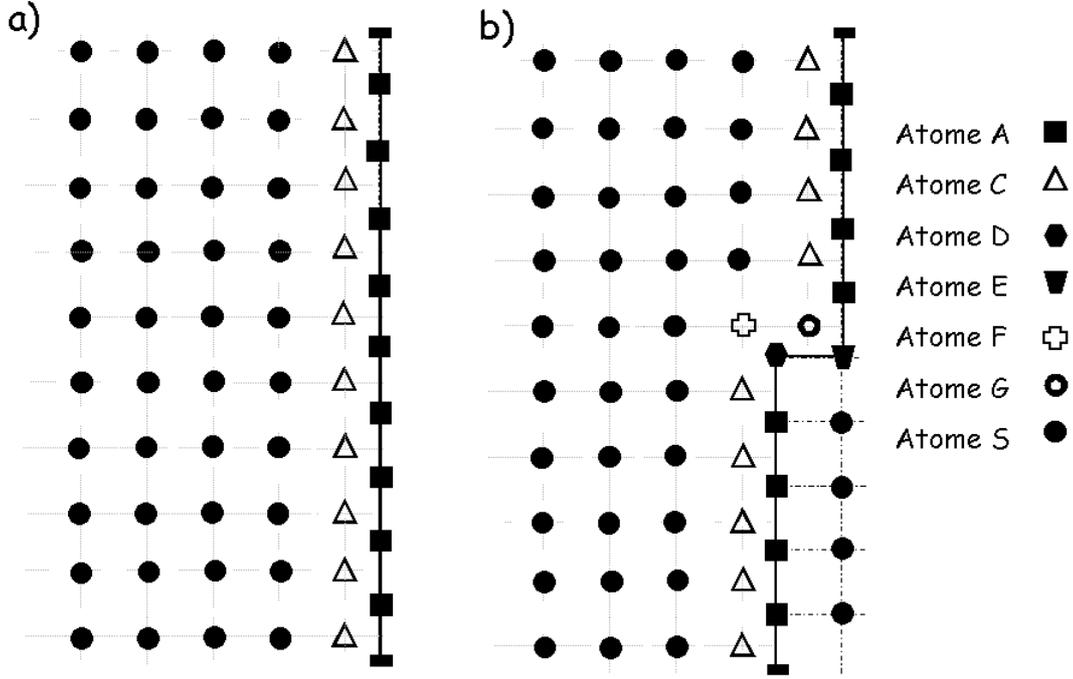


FIG. 2.15: Schéma d'une période de 60 atomes sur une surface (1 1 1) avec et sans cran.

Création d'un cran sur la surface (1 1 1) et (115)

La figure 2.15.b permet de visualiser les différents sites atomiques générés par la formation d'un cran simple.

La contribution d'anisotropie de Néel d'une surface parfaite (1 1 1) composée de 60 atomes (figure 2.15.a) s'écrit :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 1)_{par\ fait} = \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{40A_S + 10A_C + 10A_A}{60} \right) \quad (2.81)$$

La contribution d'une surface (1 1 1) présentant un cran s'exprime par :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 1)_{cran} = \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{38A_S + 9A_C + 9A_A + A_G + A_F + A_E + A_D}{60} \right) \quad (2.82)$$

Il est alors possible de déterminer $K_u^{mcS}(1\ 1\ 1)_{création\ cran}$, la contribution anisotrope de création d'un cran à partir de 2.81 et 2.82 :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 1)_{création\ cran} = K_u^{mcS}(1\ 1\ 1)_{cran} - K_u^{mcS}(1\ 1\ 1)_{par\ fait} \quad (2.83)$$

Finalement,

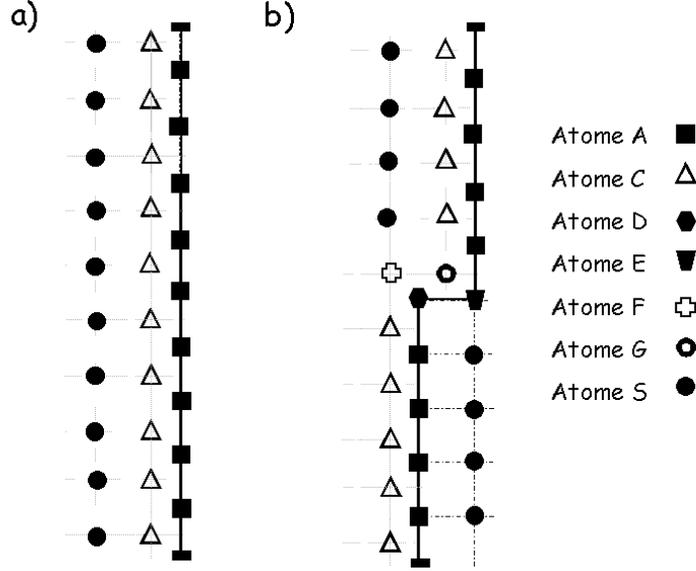


FIG. 2.16: Schéma permettant de visualiser les différents sites atomiques avec ou sans cran sur une surface (115) comportant 30 atomes.

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{création cran}} = \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{A_G + A_F + A_E + A_D - 2A_S - A_C - A_A}{60} \right) \quad (2.84)$$

La figure 2.15.b représente une surface (1 1 11) ayant un cran tous les 10 atomes c'est à dire environ tous les 23 Å. La contribution d'anisotropie magnétique de surface présentant un cran tous les 10 atomes peut être réécrite par :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{cran tous les 10 atomes}} = K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{parfait}} + K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{création cran}} \quad (2.85)$$

ce qui peut encore se mettre sous la forme :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{cran tous les 10 atomes}} = -0,0745l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,178}{6 \times 10} \right) \quad (2.86)$$

Il est alors facile de généraliser cette formule à un cran situé tous les N atomes, on obtient :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,0745l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,178}{6 \times N} \right) \quad (2.87)$$

De même, on obtient pour une surface (115) à l'aide de la figure 2.16 :

$$K_u^{mcS}(115)_{\text{création cran}} = \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{A_G + A_F + A_E + A_D - 2A_S - A_C - A_A}{30} \right) \quad (2.88)$$

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 5)_{\text{cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,1234l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,203}{3 \times N} \right) \quad (2.89)$$

Création d'un double cran sur la surface (1 1 11)

En procédant de la même manière que précédemment, on obtient d'après la figure 2.17 :

$$K_u^{mcS}(1111)_{\text{création double cran}} = \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{A_G + A_F + A_E + A_D + A_I + A_H - 4A_S - A_C - A_A}{60} \right) \quad (2.90)$$

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{double cran tous les 10 atomes}} = -0,0745l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{2,298}{6 \times 10} \right) \quad (2.91)$$

Finalement, en généralisant on a :

$$K_u^{mcS}(1\ 1\ 11)_{\text{double cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,0745l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{2,298}{6 \times N} \right) \quad (2.92)$$

Ainsi pour la surface (1 1 11), un cran double sur une période de N atomes équivaut à environ deux crans simples sur cette même période.

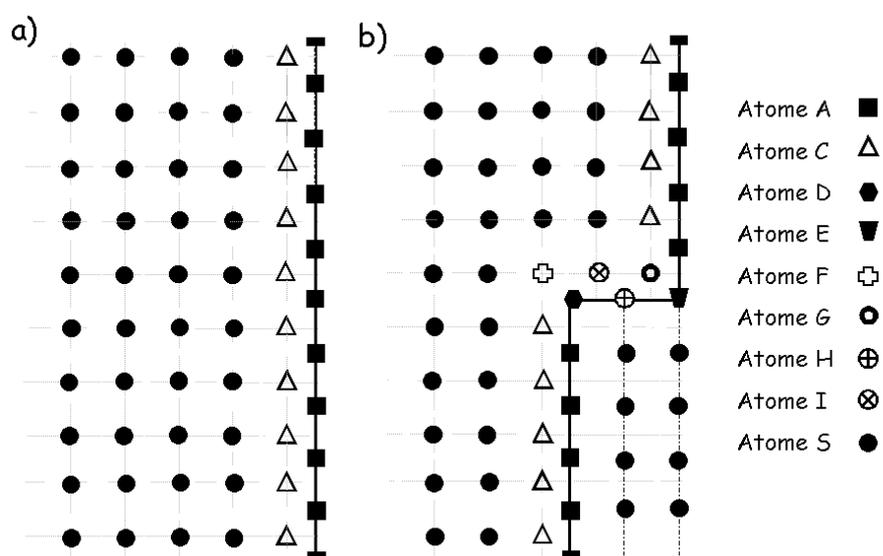


FIG. 2.17: Schéma permettant de visualiser les différents sites atomiques contribuant à l'anisotropie de surface de $(1\ 1\ 1)$ sans cran et avec un double cran.

Bibliographie

- [1] W. Wulfhekel, S. Knappmann et H. P. Oepen *J. Appl. Phys.* **79**, 988 (1996).
- [2] H. P. Oepen, C. M. Schneider, D. S. Chuang, C. A. Ballentine et R. C. O’Handley *J. Appl. Phys.* **73**, 6186 (1993).
- [3] B. Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirschner, Z. Celinski, A. S. Arrott et K. Myrtle, *Phys. Rev. B* **44**, 9348 (1991).
- [4] M. Kowalewski, C. M. Schneider et B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **47**, 8748 (1993).
- [5] P. Krams, F. Lauks, R. L. Stamps, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3674 (1992).
- [6] L. Néel, *J. Phys. Rad.* **15**, 225 (1954).
- [7] Patrick Bruno thèse de doctorat, université Paris XI, Orsay (1989).
- [8] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcia-Aparicio et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **58**, R5924 (1998).
- [9] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcia-Aparicio et Z. Q. Qiu, *J. Appl. Phys.* **85**, 4955 (1999).
- [10] W. Weber, C. H. Back, U. Ramsperger, A. Vaterlaus et R. Allenspach, *Phys. Rev. B* **52**, R14400 (1995).
- [11] W. Wulfhekel, S. Knappmann, H. P. Oepen, *J. Mag. Mag. Mat.* **163**, 267 (1996).
- [12] A. Berger, U. Linke et H. P. Oepen, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 839 (1992).
- [13] S. Boukari, R. Allenspach et A. Bischof, *Phys. Rev. B* **63**, 180402 (2001).
- [14] E. C. Stoner et E. P. Wohlfarth, *Philos. Trans. Roy. Soc. London* **A240**, 599 (1948).
- [15] W. Weber, C. H. Back, A. Bischof, Ch. Würsch et R. Allenspach, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1940 (1996).
- [16] S. van Dijken, G. Di Santo, B. Poelsema, *Phys. Rev. B* **63**, 104431 (2001).
- [17] Y. T. Millev, H. P. Oepen et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **57**, 5837 (1998).
- [18] Y. T. Millev, H. P. Oepen et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **57**, 5848 (1998).

- [19] H. P. Oepen, Y. T. Millev, H. F. Ding, S. Pütter et J. Kirschner, Phys. Rev. B **61**, 9506 (2000).
- [20] J. A. C. Bland, D. Pescia et R. F. Willis, Phys. Rev. Lett. **58**, 1244 (1987).
- [21] D. Sander, Rep. Prog. Phys. **62**, 809 (1999).
- [22] Hervé Bulou *communication privée*.

Chapitre 3

Théorie de l'EXAFS

3.1 Introduction

Afin de déterminer la structure des films minces de cobalt déposés sur les surfaces vicinales de cuivre Cu(1 1 11) et Cu(1 1 5), nous avons utilisé l'EXAFS de surface. Cette technique permet de sonder **l'environnement local** d'un élément donné. Elle est une mesure du coefficient d'absorption autour d'un seuil d'absorption X en fonction de l'énergie des photons incidents. Ce coefficient présente des oscillations après le seuil d'absorption appelées oscillations XAFS (X ray Absorption Fine Structure). Ces variations du coefficient d'absorption ont été observées par Fricke et Hertz dans les années 1920 sur des échantillons solides tandis que pour des gaz monoatomiques, le coefficient d'absorption diminue de manière monotone après le seuil [1][2]. Il est alors évident que ces oscillations sont liées à l'environnement de l'atome qui absorbe le rayonnement. De nombreuses pistes ont été explorées pour comprendre ces oscillations notamment des voies assez antagonistes telles que des théories sur l'ordre à courte distance et des théories sur l'ordre à longue distance. Il faut attendre les années 1970 et les trois articles fondateurs de Stern et al. pour qu'apparaisse la théorie actuelle de l'EXAFS [3][4][5]. L'introduction d'un traitement des oscillations EXAFS par transformée de Fourier rend alors évidente l'utilisation de l'absorption X comme moyen de détermination de paramètres structuraux. De plus, l'essor du rayonnement synchrotron a permis le développement rapide de cette technique. En effet, l'intensité d'un tel rayonnement est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle du fond continu d'une lampe à rayons X traditionnelle, ce qui offre un bon rapport signal sur bruit et permet des expériences inabordables auparavant.

Dans ce chapitre, après avoir décrit le phénomène physique engendrant ces oscillations et les différentes parties constituant le spectre XAFS, nous établirons la formule de l'EXAFS au seuil K dans l'approximation de la diffusion simple. Puis nous

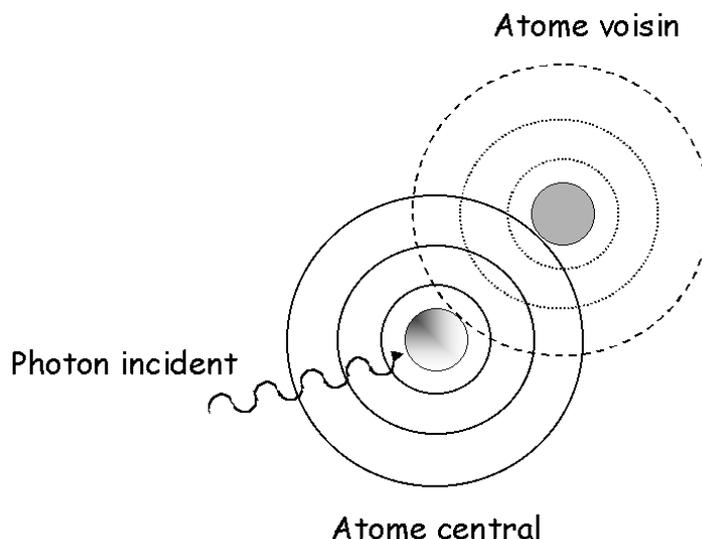


FIG. 3.1: Propagation et diffusion de l'onde décrivant le photoélectron sortant de l'atome central. Les cercles en trait plein décrivent l'onde sortante de l'atome central. Les cercles en pointillés représentent l'onde diffusée par un atome voisin.

étudierons ces oscillations avec la théorie de la diffusion multiple dans le formalisme des fonctions de Green. Pour clore ce chapitre concernant la théorie de l'EXAFS, nous détaillerons les logiciels FEFF et FEFFIT, nous ayant permis d'extraire l'information structurale des mesures d'EXAFS.

3.2 Généralités

De manière simple, les oscillations XAFS peuvent s'expliquer en terme d'interférences d'ondes. La mesure d'absorption X est faite autour d'un des seuils de l'élément dont on souhaite sonder l'environnement proche. Lorsque l'énergie des photons est légèrement inférieure à celle du seuil étudié, l'absorption est quasiment constante, puis en dépassant cette énergie seuil, elle croît brutalement. L'atome au seuil duquel on se place est appelé communément atome central. Après absorption d'un photon, il émet un électron de coeur appelé photoélectron. Ce photoélectron peut être décrit par une onde qui se propage dans la matière. Cette onde sortante de l'atome central est diffusée par les atomes environnants et revient interférer sur l'atome central avec l'onde sortante (figure 3.1). En fonction de l'énergie du photon absorbé, le vecteur d'onde du photoélectron varie et ces interférences sont tantôt destructives tantôt constructives et forment les oscillations XAFS.

D'après la loi de Beer-Lambert, l'intensité absorbée décroît en fonction de la dis-

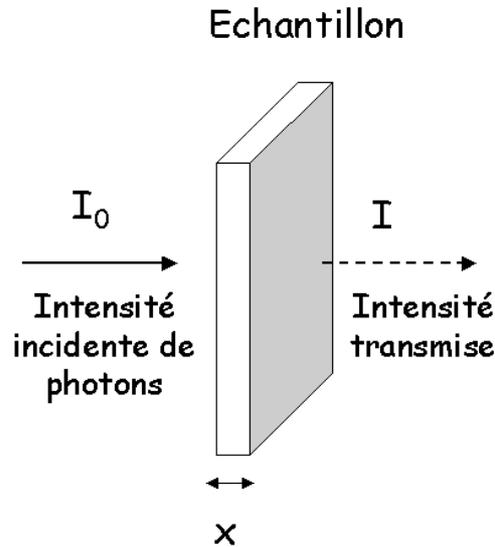


FIG. 3.2: Schéma de montage en transmission.

tance traversée par le rayonnement :

$$I = I_0 \exp(-\mu x) \quad (3.1)$$

μ est le coefficient d'absorption X de l'élément et x la distance traversée par le rayonnement. I_0 est l'intensité incidente du flux de photons et I l'intensité transmise. Le faisceau de photons incidents est monochromatique.

La figure 3.2 représente un montage classique de mesure du coefficient d'absorption en transmission.

On a alors :

$$\mu = \frac{1}{x} \ln \left(\frac{I_0}{I} \right) \quad (3.2)$$

Expérimentalement, la technique de l'EXAFS consiste à mesurer le coefficient d'absorption μ en fonction de l'énergie des photons incidents. Un spectre XAFS caractéristique est présenté sur la figure 3.3. On y définit trois zones :

- La région avant seuil, région pour laquelle les photons ne sont pas assez énergétiques pour arracher un électron au seuil duquel on se trouve.
- Lorsque les photons sont suffisamment énergétiques, l'absorption croît brutalement. Cette énergie particulière est appelée énergie de seuil, on la note E_s . La zone

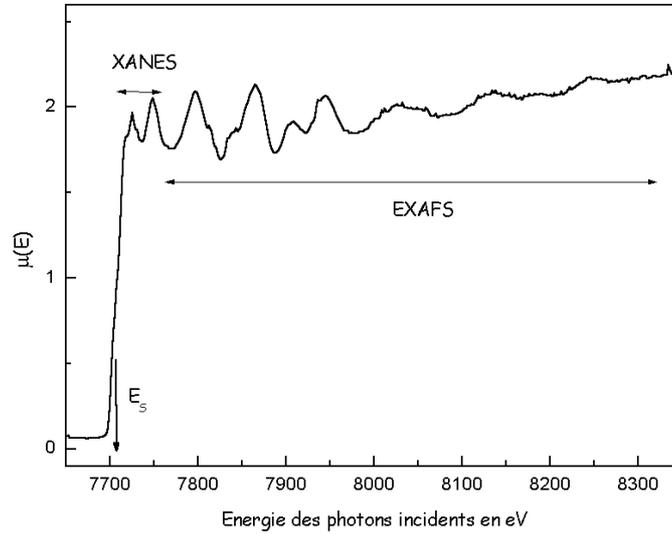


FIG. 3.3: Spectre EXAFS obtenu sur un film mince de cobalt au seuil K du cobalt.

s'étendant de 30 eV à 50 eV après le seuil est appelée **XANES** (X ray Absorption Near Edge Structure). Dans cette région, le photoélectron ayant une faible énergie cinétique se situe dans des états électroniques juste au dessus du niveau de Fermi. Il interagit alors fortement avec les atomes environnants. La théorie du XANES est plus complexe que celle de l'EXAFS, cependant des développements récents permettent un traitement aisé de cette partie des oscillations. Le **XANES** est généralement utilisé pour extraire des informations concernant la structure électronique du matériau ou bien l'environnement chimique de l'atome absorbeur.

- Afin d'extraire les paramètres structuraux, nous n'utiliserons que la partie du spectre appelée **EXAFS** (Extended X ray Absorption Fine Structure). Elle se situe après le XANES et s'étend jusqu'à environ 1000 eV après le seuil parfois au delà. Cette région est sensible à l'environnement de l'atome central. Puisque dans cette zone l'énergie cinétique du photoélectron est plus importante, on représente le photoélectron dans le cadre de l'**approximation de l'électron libre**. On définit l'énergie cinétique du photoélectron E_c :

$$E_c = \hbar\omega - E_l$$

$\hbar\omega$ est l'énergie du photon absorbé, E_l l'énergie de liaison de l'électron éjecté repérée sur le spectre EXAFS par la valeur de l'énergie de seuil E_s . L'électron peut alors être

considéré comme un électron libre de longueur d'onde λ donnée par la relation de de Broglie :

$$\lambda = \frac{h}{p}$$

Or $p = mv$, on a ainsi $E_c = \frac{p^2}{2m} = \frac{h^2}{2m\lambda^2} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ avec k la norme du vecteur d'onde du photoélectron.

On obtient $\frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \hbar\omega - E_s$ et donc :

$$k = \sqrt{\frac{2m(\hbar\omega - E_s)}{\hbar^2}} \quad (3.3)$$

On définit les oscillations EXAFS notées $\chi(k)$ par :

$$\chi(k) = \frac{\mu(k) - \mu_0(k)}{\mu_0(k)} \quad (3.4)$$

$\mu(k)$ est le coefficient d'absorption d'un atome dans un solide en fonction de l'énergie des photons et $\mu_0(k)$ représente le coefficient d'absorption du même atome isolé sans atome voisin appelé encore absorption atomique.

3.3 Formule de l'EXAFS au seuil K en diffusion simple

Nous allons dans ce paragraphe établir la formule classique de l'EXAFS au seuil K en lumière polarisée linéairement selon \vec{z} . Une des principales approximations qui permet de simplifier ce calcul est l'**approximation de diffusion simple**. Dans le cadre de cette simplification, seules sont prises en compte les diffusions du photoélectron ne faisant intervenir que deux atomes : l'atome central et un unique atome voisin. La justification d'une telle approximation est de considérer que dans la région de l'EXAFS, le photoélectron a une importante énergie cinétique et donc sa diffusion par les atomes environnants est principalement une diffusion vers l'avant et vers l'arrière (0° et 180°). Il y a une faible proportion de diffusion multiple schématisée sur la figure 3.4. Cette approximation ne permet de traiter exactement que la couche de premiers voisins, couche ayant la longueur de chemin de diffusion la plus courte. Comme nous le verrons par la suite cette hypothèse peut générer d'importantes erreurs et la diffusion multiple doit être prise en compte pour traiter quantitativement la partie EXAFS du spectre.

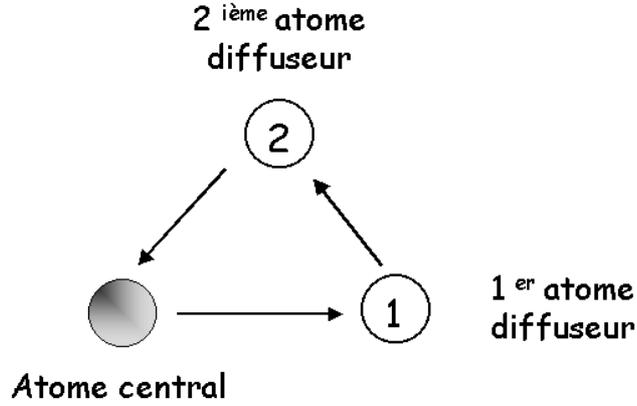


FIG. 3.4: Exemple de diffusion multiple faisant intervenir trois atomes.

Le principal avantage de cette démonstration très simplifiée de la formule de l'EXAFS est d'être assez proche de la description du phénomène physique engendrant ces oscillations [8][14]. Si la rigueur des différents calculs exposés dans ce paragraphe peut être discutée, ce développement fait appel à de nombreuses approximations et permet de soulever de manière assez pédagogique les nombreuses subtilités de l'EXAFS et c'est principalement dans ce but que je souhaitais la développer.

Nous développerons la formule de l'EXAFS dans le cadre de l'**approximation dipolaire électrique**. Étant au seuil K, nous ne considérons donc que les transitions d'un état s vers un état de symétrie p . Dans cette approximation, $\vec{\epsilon}$ la polarisation du champ électrique du photon est alors considérée comme uniforme dans son recouvrement avec la couche K.

3.3.1 Règle d'or de Fermi et coefficient d'absorption

La règle d'or de Fermi établit la densité de probabilité de transition W d'un électron dans un état initial $|i\rangle$ vers un état final $|f\rangle$ sous l'influence d'un opérateur d'excitation. Dans notre cas, l'excitation est de type dipolaire électrique :

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_f |\langle i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle|^2 \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \quad (3.5)$$

$\vec{\epsilon} \cdot \vec{r}$ est l'hamiltonien dipolaire électrique. E_i est l'énergie de l'état initial, E_f celle de l'état final et $\hbar\omega$ l'énergie des photons incidents.

On peut montrer que μ le coefficient d'absorption s'écrit [14] :

$$\mu(\hbar\omega) \propto -\frac{2}{\pi} \sum_f |\langle i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle|^2 \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \quad (3.6)$$

3.3.2 Détermination de l'état final $|f\rangle$

Afin d'obtenir l'expression du coefficient d'absorption, il suffit de déterminer l'onde décrivant l'état final $|f\rangle$, $|f\rangle$ représente le photoélectron se propageant dans la matière. L'atome central émetteur du photoélectron est entouré d'atomes. Les premières couches de voisins diffusent l'onde représentant le photoélectron et l'on peut alors décomposer $|f\rangle$ en deux termes :

$$|f\rangle = |f_0\rangle + |f_d\rangle \quad (3.7)$$

$|f_0\rangle$ étant l'onde sortante de l'atome central et $|f_d\rangle$ l'onde diffusée par les voisins.

D'après les règles de sélection de transition dipolaire d'un état $|i\rangle$ vers un état $|f\rangle$ en considérant la polarisation du rayonnement incident selon l'axe \vec{z} , Δl la variation du nombre quantique du moment cinétique est égale à ± 1 et celle du nombre quantique magnétique m à 0. L'état initial étant un état $1s$ où $l = 0$ et $m = 0$, seules les composantes de $|f\rangle$ de symétrie $l = 1$ et $m = 0$ sont prises en compte lors du calcul de μ car elles sont les seules qui gènèrent un terme $\langle i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle$ non nul. De plus, puisque $|i\rangle$ est très localisée sur l'atome central, seule la partie de $|f\rangle$ proche de cet atome, donne un terme non nul à l'intégrale $\langle i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle$. Ainsi seule la partie de la fonction d'onde du photoélectron revenant sur l'atome central contribue au signal EXAFS.

Afin de décrire le potentiel dans lequel se propage le photoélectron, on utilise l'**approximation du potentiel muffin-tin**. Ce potentiel au nom imagé (moule à muffin), représente un potentiel sphérique centré sur chaque atome. Au delà d'un certain rayon appelé rayon muffin-tin (R_{MT}), le potentiel est considéré comme étant constant. Il est à noter que les rayons muffin-tin sont tels qu'il n'existe pas de recouvrement entre eux.

Dans la région de l'EXAFS, ce type de modèle de potentiel donne des résultats relativement satisfaisants. Cependant des études sont menées pour tenter d'améliorer ce potentiel, notamment des potentiels chevauchants qui présentent un recouvrement partiel des sphères muffin-tin [10]. Lors des calculs qui suivent, les fonctions d'onde ne sont exprimées que dans la partie du potentiel constant, leur forme étant alors plus simple à déterminer. En effet, le mouvement du photoélectron dans un potentiel constant est gouverné par l'équation de Schrödinger pour une particule libre dont les solutions sont bien connues.

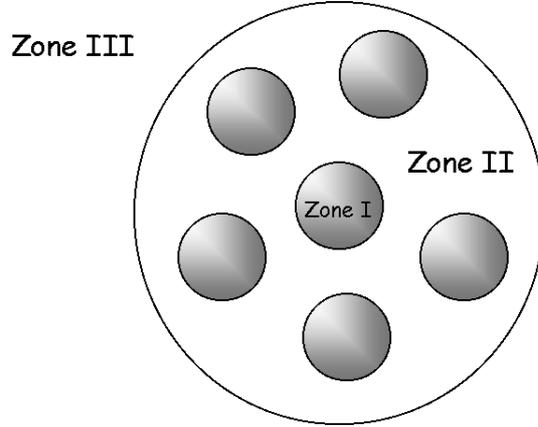


FIG. 3.5: Schéma du potentiel muffin-tin. La zone I représentant le potentiel de forme sphérique à l'intérieur du rayon muffin-tin. La zone II est la zone de potentiel constant et la zone III est la région entourant l'amas d'atomes considéré.

Dans l'approximation du potentiel de muffin-tin et dans la région de potentiel constant, l'onde sortante de l'atome central peut être décrite avec une fonction de Hankel $h_{l-1}^+(kr)$ de la manière suivante :

$$|f_0\rangle = h_1^+(kr) Y_1^0(\vec{r}) e^{i\delta_1} \quad \text{pour } r > R_{MT} \quad (3.8)$$

On note r la coordonnée radiale centrée sur l'atome absorbeur, avec $h_1^+(kr) = \left[\frac{1}{kr} + \frac{i}{(kr)^2} \right] e^{ikr}$ et $Y_1^0(\vec{r})$ étant l'harmonique sphérique de symétrie $l = 1$, $m = 0$. Le facteur de déphasage $e^{i\delta_1}$ traduit la traversée du potentiel créé par l'atome central.

Cette onde se propage vers les premiers atomes voisins situés en $r = R_i$. A cette distance, on assimile la fonction de Hankel à sa partie asymptotique $\frac{e^{ikR_i}}{kR_i}$ qui est une onde sphérique.

Afin de simplifier les calculs, on fait alors appel à une nouvelle approximation dite **approximation du petit atome**. Cette hypothèse est justifiée par le fait que le rayon atomique de l'atome diffuseur est petit devant R_i et ainsi on approxime l'onde incidente à une onde plane uniquement sur l'atome diffuseur de la forme suivante $\frac{e^{ikR_i}}{kR_i} Y_1^0(\vec{R}_i) e^{i\delta_1} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$.

Cet atome de la première couche situé en R_i diffuse l'onde sortante en une onde sphérique $|f_d\rangle$ centrée sur lui. Dans la partie constante du potentiel, $|f_d\rangle$ s'exprime par :

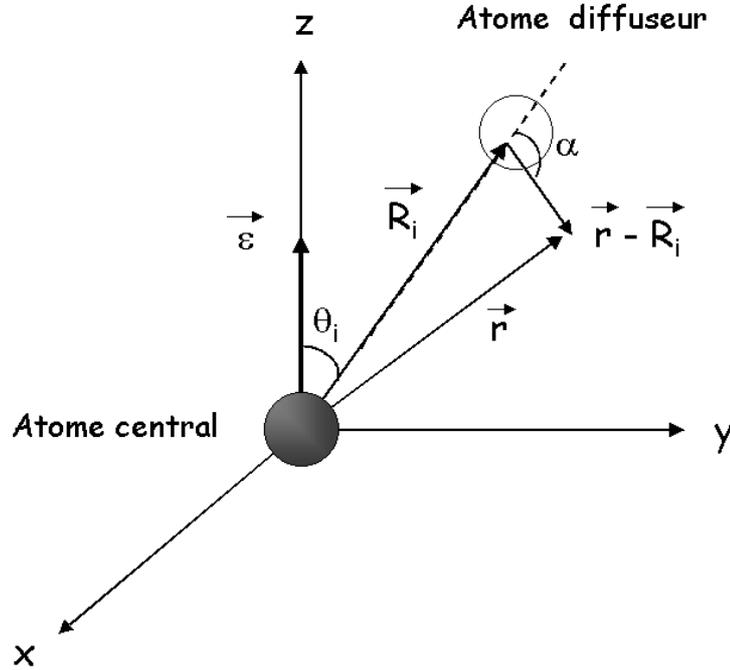


FIG. 3.6: Schéma permettant de visualiser les notations utilisées lors des calculs.

$$|f_d\rangle = \underbrace{\frac{e^{ikR_i}}{kR_i} Y_1^0(\vec{R}_i) e^{i\delta_1}}_{\text{Amplitude de l'onde sortante en } R_i} \underbrace{f_i(\alpha)}_{\text{Probabilité de diffusion dans la direction } \alpha} \underbrace{\frac{e^{ik|\vec{r}-\vec{R}_i|}}{k|\vec{r}-\vec{R}_i|}}_{\text{Onde sphérique centrée sur l'atome diffuseur}} \quad (3.9)$$

Puisque nous nous situons dans le cadre de la diffusion simple, l'angle α est égal à π . Cette onde sphérique sortant de l'atome diffuseur se propage en direction de l'atome central et est ensuite diffusée par ce dernier. Afin de déterminer l'expression de cette onde diffusée par l'atome absorbeur, nous avons besoin auparavant de déterminer la valeur de $|f_d\rangle$ proche de $r = 0$. Nous allons donc décomposer l'expression 3.9 sur une base d'harmoniques sphériques [8]. Nous conserverons uniquement les termes de symétrie $l = 1$ et $m = 0$ car seuls ces termes donneront une intégrale $\langle i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle$ non nulle. D'après l'expression 3.9, on note $|f_d\rangle = A \frac{e^{ik|\vec{r}-\vec{R}_i|}}{k|\vec{r}-\vec{R}_i|}$, A étant la partie constante de l'onde $A = \frac{e^{ikR_i}}{kR_i} Y_1^0(\vec{R}_i) e^{i\delta_1} f_i(\pi)$. Les termes du développement en harmoniques sphériques de symétrie $l = 1$ et $m = 0$ donnent :

$$|f_d\rangle^{(1,0)} = \underbrace{A \times 4ik\pi \frac{e^{ikR_i}}{kR_i} Y_1^0(\vec{R}_i)}_{A'} j_1(kr) Y_1^{0*}(\vec{r}) \quad \text{quand } r \rightarrow 0 \quad (3.10)$$

$j_1(kr)$ est une fonction de Bessel sphérique. $Y_1^{0*}(\vec{r}) = Y_1^0(\vec{r}) = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} \cos \theta$.
 θ est l'angle entre la liaison atome central-atome diffuseur et le vecteur polarisation.
 L'atome central diffuse $|f_d\rangle^{(1,0)}$ dans la zone de potentiel constant sous une onde de la forme suivante :

$$|f_d\rangle^{(1,0)} = A' h_1^+(kr) e^{i2\delta_1} Y_1^0(\vec{r}) \quad \text{en } r > R_{MT} \quad (3.11)$$

avec le terme de déphasage $e^{i2\delta_1}$ traduisant la traversée aller puis retour du potentiel de l'atome central. Finalement, l'expression de l'onde diffusée est

$$|f_d\rangle^{(1,0)} = \frac{e^{ikR_i}}{kR_i} Y_1^0(\vec{R}_i) e^{i\delta_1} f_i(\pi) 4ik\pi \frac{e^{ikR_i}}{kR_i} Y_1^0(\vec{R}_i) h_1^+(kr) e^{i2\delta_1} Y_1^0(\vec{r}) \quad \text{en } r > R_{MT} \quad (3.12)$$

D'après la relation 3.7, l'onde $|f\rangle$ décrivant l'état final s'écrit dans la partie du potentiel constant sous la forme :

$$|f\rangle = h_1^+(kr) Y_1^0(\vec{r}) e^{i\delta_1} \left[1 + 3i \cos^2 \theta_i f_i(\pi) \frac{e^{2i(kR_i + \delta_1)}}{kR_i^2} \right] \quad \text{en } r > R_{MT} \quad (3.13)$$

3.3.3 Détermination de l'expression des oscillations EXAFS $\chi(k)$

La dernière étape pour déterminer le coefficient d'absorption est de calculer l'élément de matrice $\langle i | \vec{e} \cdot \vec{r} | f \rangle$ (équation 3.6). Sans entrer dans les détails de l'intégration, cette intégrale nous mène à l'expression suivante du coefficient d'absorption [15] :

$$\mu = \mu_0 \left(1 - \text{Im} \left[3 \cos^2 \theta_i f_i(\pi) \frac{e^{2i(kR_i + \delta_1)}}{kR_i^2} \right] \right) \quad (3.14)$$

où μ_0 est le coefficient d'absorption d'un atome isolé.

Les oscillations EXAFS créées par un unique atome diffuseur s'expriment sous la forme :

$$\chi(k) = \frac{\mu(k) - \mu_0(k)}{\mu_0(k)} = -\frac{3 \cos^2 \theta_i |f_i(\pi)|}{kR_i^2} \sin [2kR_i + 2\delta_1 + \arg(f_i(\pi))] \quad (3.15)$$

Dans l'approximation de la diffusion simple, les oscillations EXAFS sont la somme, sur toutes les couches i , des contributions de chacun des diffuseurs j constituant la $i^{\text{ème}}$ couche, on obtient :

$$\chi(k) = \sum_i \sum_{j=1}^{j=N_i} -\frac{3 \cos^2 \theta_j^i |f_j(\pi)|}{kR_i^2} \sin [2kR_i + 2\delta_1 + \arg(f_i(\pi))] \quad (3.16)$$

N_i est le nombre d'atomes constituant la $i^{\text{ème}}$ couche. j est l'indice décrivant les atomes d'une même couche. θ_j^i est l'angle formé entre la polarisation et la liaison atome central- atome j de la couche i .

On écrit souvent cette dernière formule sous la forme :

$$\chi(k) = \sum_i -\frac{N_i^* |f_i(\pi)|}{kR_i^2} \sin [2kR_i + 2\delta_1 + \arg(f_i(\pi))] \quad (3.17)$$

Avec $N_i^* = \sum_{j=1}^{j=N_i} 3 \cos^2 \theta_j^i$, N_i^* est appelé nombre effectif d'atomes dans la $i^{\text{ème}}$ couche. Deux autres phénomènes physiques doivent être pris en compte pour expliquer l'allure des oscillations du coefficient d'absorption observées expérimentalement :

- les pertes inélastiques et la durée de vie du trou créé dans la couche K
- et l'agitation thermique des atomes et le désordre structural.

3.3.4 Pertes inélastiques du photoélectron et durée de vie du trou profond

L'intensité du courant de photoélectrons décroît exponentiellement en fonction de la distance qu'ils parcourent. En effet, le choc électron-électron provoque des pertes inélastiques qui limitent la course de photoélectron et donc le nombre de photoélectrons revenant sur l'atome central et contribuant au signal EXAFS. Ceci a pour conséquence de diminuer les oscillations EXAFS. De plus, le photoélectron doit revenir sur l'atome central en un temps inférieur à celui de la durée de vie du trou profond, sinon sa contribution au signal est également nulle. Ces deux phénomènes sont décrits dans la formule de l'EXAFS par un facteur d'amortissement de la forme $\exp\left(-\frac{2R_j}{\lambda(k)}\right)$ avec $\frac{1}{\lambda(k)} = \frac{1}{\lambda_e(k)} + \frac{1}{\lambda_l(k)}$ où $\lambda_e(k)$ est le libre parcours moyen du photoélectron dans la matière et $\lambda_l(k)$ est lié à la durée de vie du trou créé dans la couche K.

3.3.5 Agitation thermique et désordre structural.

La formule 3.17 suppose que dans chacune des couches de premiers voisins il n'y ait qu'une seule distance entre l'atome central et les atomes de la $i^{\text{ème}}$ couche, c'est à dire que le système soit parfaitement rigide et ordonné. Or ce n'est jamais le cas, les atomes d'une même couche sont distribués autour d'une position moyenne selon une loi de distribution $g_i(r)$. Deux phénomènes physiques sont à l'origine de cette distribution et ont comme conséquence d'atténuer les oscillations EXAFS :

- les vibrations thermiques des atomes autour de leur position d'équilibre provoquent une distribution que l'on qualifie de dynamique. Ce phénomène peut être atténué lorsque les spectres sont enregistrés à basse température.

- le désordre structural lui aussi atténue les interférences et réduit les amplitudes des oscillations EXAFS.

$g_i(r)$ est par conséquent la probabilité de trouver un atome de la $i^{\text{ème}}$ couche à une distance r de l'atome central. Nous supposons dans notre cas que $g_i(r)$ est une fonction de distribution de type gaussien et le facteur d'amortissement de la formule EXAFS dû à l'agitation thermique et au désordre structural est de la forme $\exp(-2\sigma_i^2 k^2)$. σ_i est la dispersion des distances dans la couche i . Dans certains échantillons très désordonnés, une distribution gaussienne n'est pas appropriée. Des modèles faisant intervenir des distributions asymétriques peuvent alors être utilisés comme la méthode des cumulants [6][7][8]. Il est à noter que σ_i^2 appelé terme de Debye-Waller est différent de celui utilisé en diffraction. En effet, en diffraction, ce terme correspond à l'écart quadratique moyen entre la position réelle de l'atome et sa position théorique dans la maille cristallographique alors qu'en EXAFS, cet écart quadratique moyen est calculé sur la distance entre l'atome et l'atome central.

Finalement la formule standard de l'EXAFS au seuil K en diffusion simple s'écrit :

$$\chi(k) = \sum_i - \frac{N_i^* |f_i(\pi)|}{kR_i^2} \exp\left(-\frac{2R_i}{\lambda(k)}\right) \exp(-2\sigma_i^2 k^2) \sin[2kR_i + 2\delta_1 + \arg(f_i(\pi))] \quad (3.18)$$

Récapitulons brièvement la signification de chacun des termes constituant la formule théorique de l'EXAFS au seuil K en diffusion simple.

- k est le module du vecteur d'onde du photoélectron.
- $|f_i(\pi)|$ est l'amplitude de rétrodiffusion de l'onde sortante par l'atome diffuseur pour $\alpha = \pi$. Cette probabilité de diffusion dépend de la nature chimique de l'atome diffuseur et de k .

- δ_1 est le déphasage que produit l'atome central sur l'onde quand elle traverse son potentiel.

- de même, $\arg(f_i(\pi))$ est le déphasage dû à l'atome diffuseur.
- le terme $N_i^* = \sum_{j=1}^{j=N_i} 3 \cos^2 \theta_j^i$ est le nombre effectif d'atomes dans la couche i et dépend de l'orientation de la polarisation par rapport au cristal. Dans le cas d'un solide n'ayant pas d'orientation préférentielle alors la moyenne de ce terme est égale à N_i . Par contre, si l'échantillon est orienté, le spectre EXAFS est sensible à l'orientation de la polarisation et la contribution d'une liaison au signal EXAFS est pondérée par le facteur $3 \cos^2 \theta_j^i$. Ceci permet de privilégier certaines liaisons et d'en extraire plus aisément les paramètres structuraux.

- $\exp\left(-\frac{2R_i}{\lambda(k)}\right)$ est le terme d'amortissement des oscillations EXAFS lié au libre parcours du photoélectron et à la durée de vie du trou profond.

- $\exp(-2\sigma_i^2 k^2)$ est également un terme amortissant les oscillations qui est causé par l'agitation thermique et par le désordre structural de l'échantillon.

On distingue deux catégories de terme constituant la formule de l'EXAFS. $|f_i(\pi)|$, $\arg(f_i(\pi))$ et δ_1 sont des termes liés à la nature chimique des atomes voisins diffuseurs et de l'atome central tandis que R_i , $\exp(-2\sigma_i^2 k^2)$ et N_i^* sont liés à la structure de l'échantillon.

3.4 EXAFS et théorie de la diffusion multiple

3.4.1 Importance de la théorie de la diffusion multiple en EXAFS

Nous avons vu dans le paragraphe précédent lors du calcul de la formule de l'EXAFS standard que la principale hypothèse était celle de la diffusion simple. Or cette approximation, si elle est correcte pour analyser la couche de premiers voisins, s'avère inexacte lorsque l'on souhaite analyser quantitativement les couches de voisins plus lointains. Il faut alors considérer les termes dus à la diffusion multiple. Il existe, en particulier, des configurations (atomes alignés) dans lesquelles la diffusion multiple peut être d'égale importance voire supérieure à la diffusion simple. On parle alors de *focusing* ou de *shadowing effect* (figure 3.7).

3.4.2 Introduction à la théorie de la diffusion multiple

La théorie de la diffusion multiple est une technique de résolution de l'équation de Schrödinger pour un potentiel quelconque fondée sur la réduction d'un problème à N électrons à un problème monoélectronique. Deux approches sont utilisées pour traiter la diffusion multiple :

- l'approche de l'onde diffusée développée dans la thèse de Claire Levelut [9].
- l'approche avec les fonctions de Green.

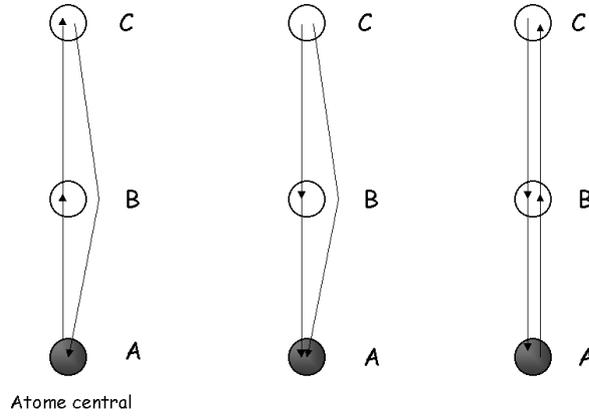


FIG. 3.7: Exemples de focusing effects.

Nous choisissons cette dernière voie pour comprendre la diffusion multiple. Je ne préciserai par la suite que les grandes étapes du raisonnement permettant d'établir la formule du coefficient d'absorption.

D'après la règle d'or de Fermi, exposée précédemment, on a

$$\mu(\hbar\omega) \propto -\frac{2}{\pi} \sum_f |\langle i | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | f \rangle|^2 \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \quad (3.19)$$

Développons le terme au carré de l'expression ci-dessus :

$$\mu(\hbar\omega) \propto -\frac{2}{\pi} \sum_f \langle i | \vec{\epsilon}^* \cdot \vec{r}^j | f \rangle \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \langle f | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | i \rangle \quad (3.20)$$

En insérant la relation spectrale ([10] p 21) :

$$\sum_f |f\rangle \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \langle f | = \frac{2m}{\hbar^2} \left(\frac{-1}{\pi} \right) \text{Im} \left(G(\vec{r}, \vec{r}^j, k) \right) \quad (3.21)$$

dans la relation 3.20, on obtient

$$\mu(\hbar\omega) \propto \frac{4m}{\pi^2 \hbar^2} \langle i | \vec{\epsilon}^* \cdot \vec{r}^j \text{Im} \left(G(\vec{r}, \vec{r}^j, k) \right) \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | i \rangle \quad (3.22)$$

Avec $G(\vec{r}, \vec{r}^j, k)$, la fonction de Green associée à l'équation de Schrödinger suivante :

$$(H_0 + V(\vec{r})) |f\rangle = E |f\rangle \quad (3.23)$$

H_0 est l'hamiltonien de l'électron libre, $V(\vec{r})$ le potentiel dans lequel se propage l'électron et $|f\rangle$ sa fonction d'onde.

On définit $G(k)$ l'opérateur associé à la fonction de Green $G(\vec{r}, \vec{r}^j, k)$ par les relations suivantes :

$$G(k) = \langle \vec{r} | G(\vec{r}, \vec{r}', k) | \vec{r}' \rangle$$

$$G(k) = [E - H_0 - V]^{-1} \quad (3.24)$$

De la même manière, on définit la fonction de Green de l'électron libre $G_0(\vec{r}, \vec{r}', k)$ appelée propagateur de l'électron libre. $G_0(\vec{r}, \vec{r}', k)$ est associée à l'équation de Schrödinger $H_0 |f_0\rangle = E |f_0\rangle$. $G_0(k)$ l'opérateur associé à $G_0(\vec{r}, \vec{r}', k)$ est défini par :

$$G_0(k) = \langle \vec{r} | G_0(\vec{r}, \vec{r}', k) | \vec{r}' \rangle$$

$$G_0(k) = [E - H_0]^{-1} \quad (3.25)$$

En réécrivant $G(k)$ à l'aide de 3.24 et 3.25, on obtient l'équation de Dyson :

$$G(k) = G_0(k) + G_0(k)VG(k) \quad (3.26)$$

$G(k)$ se situe dans les deux membres de l'équation de Dyson. On peut utiliser cette équation de manière itérative pour déterminer l'opérateur $G(k)$ et ainsi obtenir le développement de Born :

$$G(k) = G_0(k) + G_0(k)VG_0(k) + G_0(k)VG_0(k)VG_0(k) + \dots \quad (3.27)$$

Pour éviter un tel développement, on introduit $T(k)$ un opérateur de transition. Cet opérateur est défini par :

$$T(k)G_0(k) = VG(k) \quad (3.28)$$

En insérant 3.28 dans l'expression 3.26 on obtient :

$$G(k) = G_0(k) + G_0(k)T(k)G_0(k) \quad (3.29)$$

T est défini dans le formalisme de l'opérateur de chemin τ par

$$T = \sum_{i,j} \tau^{ij} \quad (3.30)$$

τ^{ij} sont les opérateurs de diffusion multiple que l'on développe de la manière suivante :

$$\tau^{ij} = t_i \delta_{ij} + \sum_{l \neq i} t_l G_0(k) \tau^{lj} \quad (3.31)$$

τ^{ij} est la somme de tous les chemins de diffusion partant de l'atome i et se terminant sur l'atome j .

t_i est la matrice de diffusion associée au site atomique i .

D'après 3.30 et 3.31, T peut être écrit sous la forme symbolique suivante :

$$T = t + tG_0t + tG_0tG_0t + \dots \quad (3.32)$$

Sans entrer dans le détail des calculs, Delphine Cabaret [10] montre que l'expression 3.22 est équivalente à :

$$\mu(\hbar\omega) \propto \sum_{LL'} \text{Im} (\tau_{LL'}^{ii} M_L(\hat{\epsilon}) [M_{L'}(\hat{\epsilon})]^*) \quad (3.33)$$

où $M_L(\hat{\epsilon})$ et $[M_{L'}(\hat{\epsilon})]^*$ sont facilement calculables avec $L = (m, l)$. La détermination du coefficient d'absorption réside donc dans le calcul des éléments $\tau_{LL'}^{ii}$ de la matrice τ .

On peut montrer que τ s'exprime de la manière suivante [10] :

$$\tau = [1 - kT_a \mathcal{H}]^{-1} T_a \quad (3.34)$$

\mathcal{H} est une matrice ne dépendant que des coordonnées des atomes dans l'amas considéré, T_a est la matrice de diffusion atomique, elle ne dépend que du potentiel. L'un des atouts majeurs de la théorie de la diffusion multiple est de dissocier l'information structurale de l'information électronique.

L'expression 3.34 a été établie en considérant un potentiel de type muffin-tin sans tenir compte de la zone extérieure à notre amas d'atome (figure 3.5). Cette approximation est justifiée car le potentiel utilisé n'est pas un potentiel à longue portée et l'influence de la zone extérieure peut être négligée.

Un calcul de diffusion multiple exact (ou encore *full multiple scattering calculation*) revient donc, après le calcul des matrices \mathcal{H} et T_a , à inverser la matrice $[1 - kT_a \mathcal{H}]$ pour chaque point d'énergie. Les expressions de \mathcal{H} et T_a sont détaillées dans la thèse de Delphine Cabaret [10].

3.5 De la théorie vers l'algorithme

Après avoir établi l'expression du coefficient d'absorption dans le cadre de la théorie de la diffusion multiple avec les fonctions de Green, il faut alors créer des algorithmes permettant le calcul théorique des spectres d'absorption. Très rapidement, les calculateurs sont confrontés à des développements convergeant très lentement et les calculs exacts deviennent vite irréalisables. L'introduction de certaines approximations permet d'obtenir des temps de calcul raisonnables, mais au détriment de la précision du calcul. Nous exposerons dans ce paragraphe sans être exhaustif différentes approximations qui ont été utilisées. Puis nous nous attarderons plus particulièrement sur le code FEFF6 créée par J. J. Rehr et son équipe basé sur l'algorithme Rehr et Albers permettant de réduire considérablement les temps de calcul des oscillations XAFS. Enfin, nous regarderons brièvement les avancées apportées par la dernière version de ce code appelé FEFF8. Finalement, nous détaillerons les modèles de cluster que nous avons utilisés avec le logiciel FEFFIT pour déterminer la structure des films minces de cobalt.

3.5.1 Exemples de premières approximations utilisées

Nous avons vu dans le paragraphe 3.4.2 que l'on pouvait écrire le coefficient d'absorption dans le formalisme des fonctions de Green sous la forme (équation 3.22) :

$$\mu(k) \propto \frac{4m}{\pi^2 \hbar^2} \langle i | \vec{\epsilon}^* \cdot \vec{r}^j \text{Im} \left(G \left(\vec{r}, \vec{r}^j, k \right) \right) \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | i \rangle \quad (3.35)$$

Ainsi le calcul du coefficient d'absorption réside dans la détermination de la fonction de Green. Par la suite nous utiliserons les notations utilisées par Rehr et al. dans [13]. D'après les équations 3.29 et 3.32, l'opérateur de Green $G(k)$ se développe de manière symbolique par :

$$G = G_c + \underbrace{\sum_{i \neq 0} G_c t_i G_c}_{\text{Diffusion simple}} + \underbrace{\sum_{i \neq j, j \neq 0} G_c t_i G_0 t_j G_c}_{\text{Diffusion d'ordre 3}} + \dots \quad (3.36)$$

Dans cette expression contrairement aux équations 3.29 et 3.32, on distingue l'atome central des atomes voisins en introduisant deux fonctions de Green G_c et G_0 .

On définit G_c la fonction de Green associée à l'atome central, G_0 est la fonction de Green de l'électron libre. t_j sont les éléments de la matrice de diffusion avec

$$t_j = \exp(i\delta_j) \sin \delta_j \quad (3.37)$$

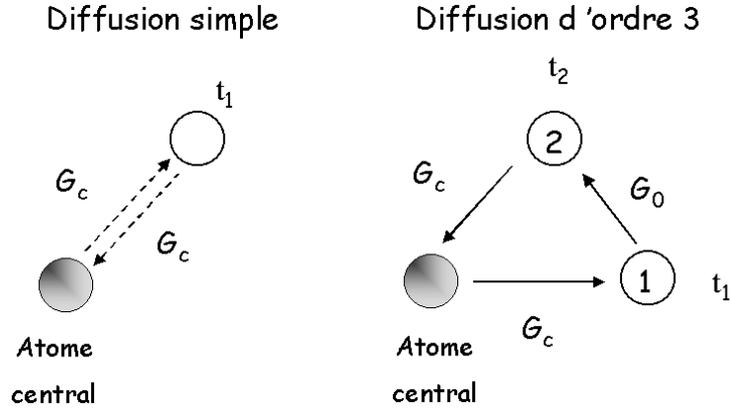


FIG. 3.8: Exemple de diffusion simple et de diffusion d'ordre 3 illustrant le développement de la fonction de Green G .

grâce auxquels on introduit les déphasages partiels δ_j dûs aux potentiels des atomes diffuseurs.

Dans le développement 3.36, le premier terme représente "le bruit de fond", le second est la contribution de tous les chemins de diffusion simple à la matrice de Green G . Le troisième terme correspond à la contribution de tous les chemins de diffusion faisant intervenir trois atomes (figure 3.8).

Rehr définit les éléments de matrice de la fonction libre de Green G_0 en la projetant sur une base normale de moments angulaires et de vecteurs position $|L', \vec{r}^j\rangle$:

$$G_{0\ L,L'}(\vec{\rho}) = \langle L, \vec{r} | G_0 | L', \vec{r}^j \rangle \quad (3.38)$$

et

$$G_{c\ L,L'}(\vec{\rho}) = \exp(i\delta_l) \langle L, \vec{r} | G_0 | L', \vec{r}^j \rangle \quad (3.39)$$

Avec $L = (l, m)$ moment angulaire, $\vec{\rho} = k(\vec{r} - \vec{r}^j)$ et δ_l le déphasage dû au potentiel de l'atome central.

Différentes approches ont été réalisées pour calculer $G(k)$. Le calcul exact de $G(k)$ est très coûteux en temps de calcul. Plusieurs types de modèles sont alors envisagés pour rendre ce calcul plus accessible.

L'une de ces premières méthodes utilise l'**approximation de l'onde plane**. Cette hypothèse approxime l'onde sphérique sortant de l'atome central et arrivant sur un atome voisin à une onde plane. Cette approximation permet d'obtenir de grandes simplifications de calcul et par conséquent de calculer des ordres de diffusion plus élevés. Le principal inconvénient de ce type de modèle est qu'il n'est valable que

dans la partie haute énergie de l'EXAFS. Des corrections ont alors été apportées en introduisant des amplitudes de diffusion effective $f_{eff}(\rho, \rho', \theta)$ qui permettent de tenir compte de la courbure des ondes diffusées. Cette amplitude effective est à l'origine du nom du programme FEFF. Cette méthode est basée sur **l'approximation du petit atome** qui néglige la courbure de l'onde incidente sur l'atome diffuseur **uniquement** dans sa sphère de muffin-tin. Cette approximation est justifiée car le rayon du diffuseur est petit devant la distance atome central-atome voisin.

Une autre méthode appelée méthode du cluster, calcule la diffusion multiple à tous les ordres mais sur un amas d'atomes limité. Ce modèle a été surtout utilisé pour le calcul de la partie XANES, mais des problèmes de limitations de calcul le cantonne aux faibles énergies et à de petits amas d'atomes.

3.5.2 FEFF6 et algorithme de Rehr et Albers

De manière générale, le calcul du développement en diffusion multiple est limité par deux problèmes : le nombre important de composantes du moment angulaire L pour les ordres élevés de diffusion et par la prolifération de chemins de diffusion aux grandes énergies. Nous exposerons dans les deux paragraphes suivants ces deux problèmes et de quelle manière Rehr et Albers [11] les contournent dans le code FEFF6.

Contournement de la prolifération des composantes du moment angulaire

Ce premier problème qui limite le calcul est lié à la taille des matrices de Green G_0 utilisées dans le développement 3.36. Les dimensions de ces matrices sont $N\tilde{L} \times N\tilde{L}$ avec N le nombre d'atomes contenus dans le cluster et $\tilde{L} = l_{\max}(2l_{\max} + 1) \simeq 450$ à 1200. Le nombre de termes à calculer est donc très important. L'expression de ces éléments de matrice est [11] :

$$G_{0\ L,L'}(\vec{\rho}) = 4\pi \sum_{L''} \langle Y_L Y_{L''} | Y_{L'}' \rangle h_{L'}(\vec{r}) \quad (3.40)$$

Avec $h_{L'}(\vec{r}) = i^l h_l^+(kr) Y_L(\hat{r})$, $h_l^+(kr)$ étant une fonction de Hankel.

Le développement 3.40 converge lentement et étant donné le nombre important d'éléments de matrices à calculer le calculateur est vite limité.

L'idée maîtresse de l'algorithme développé par Rehr et Albers en 1990 [11] est d'optimiser le temps de calcul de ces éléments de matrices et de développer $G_{0\ L,L'}(\vec{\rho})$ en une somme de termes à convergence rapide.

Cet algorithme se déroule en deux étapes :

- On applique tout d'abord des matrices de rotation aux propagateurs de l'électron libre $G_{0\ L,L'}(\vec{\rho})$ qui projettent toutes les liaisons de leur axe $\vec{\rho}$ sur l'axe \vec{z} .

L'introduction des matrices de rotation et des propagateurs sur l'axe \vec{z} simplifient considérablement le calcul de la diffusion multiple. Ceci fonctionne assez bien pour des chemins avec un petit nombre de diffuseurs. Pour des chemins de diffusion d'ordre supérieur, le couplage entre les valeurs de l successives sont à prendre en compte. Une autre étape est alors nécessaire.

Cette deuxième étape consiste à obtenir une **représentation séparable** des propagateurs sur l'axe \vec{z} . L'utilisation de cette représentation séparable permet de calculer exactement $G_{0\ L,L'}(\vec{\rho})$. Dans la version FEFF6, Rehr tronque le développement de $G_{0\ L,L'}(\vec{\rho})$ étant donné la convergence rapide du développement en représentation séparable. Il est à noter que la convergence rapide de ce développement est valable aussi bien pour les hautes énergies que pour les faibles énergies. L'algorithme de Rehr peut s'écrire sous la même forme que l'équation 3.41 obtenue dans le cadre de l'approximation de l'onde plane en remplaçant les amplitudes de diffusion $f_i(\theta_i)$ par des matrices de diffusion. Il est à noter que les formulations identiques entre l'algorithme de Rehr et l'équation dans l'approximation de l'onde plane ne signifie pas que l'algorithme est écrit dans l'approximation de l'onde plane.

$$\chi^{N-1}(k) = \text{Im} \left[\frac{e^{i(\rho_1+\rho_2+\dots+\rho_N)+2i\delta_1}}{\rho_1\rho_2\dots\rho_N} (\widehat{\rho}_1 \cdot \widehat{\rho}_N) f_{N-1}(\theta_{N-1}) \dots f_2(\theta_2) f_1(\theta_1) \right] \quad (3.41)$$

Si la taille de ces matrices de diffusion est de type (1×1) c'est à dire une fonction scalaire, on se retrouve dans le cas de l'approximation du petit atome vue précédemment avec une amplitude effective de diffusion. L'utilisation de matrice de diffusion (6×6) suffit pour obtenir des résultats satisfaisants.

Contournement de la prolifération des chemins de diffusion

Dans la courte introduction consacrée à l'algorithme Rehr et Albers, nous avons souligné un autre problème rencontré lors du calcul de la diffusion multiple qui était la prolifération des chemins de diffusion avec la longueur des chemins grandissante. La plupart de ces chemins en diffusion multiple ont une contribution très faible. L'utilisation de filtres repérant de manière automatique ce type de chemin et les éliminant est alors susceptible de réduire le temps de calcul sans affecter sa précision [12][13]. Avec la liste contenant les coordonnées de tous les atomes composant l'amas, tous les chemins possibles autour de l'atome central sont générés dans un rayon de $3R_1$ (R_1 étant la longueur du premier chemin rencontré en diffusion simple).

Les deux filtres principaux utilisés dans le code FEFF6 sont un filtre utilisant des calculs en onde plane et le second des calculs en onde courbe. Ces filtres sont décrits précisément dans [13]. L'amplitude calculée d'un chemin soit en onde plane ou en

onde courbe est alors exprimée en pourcentage par rapport à l'amplitude du premier chemin rencontré en diffusion simple. Un chemin est éliminé si son importance relative est inférieure à une valeur seuil fixée généralement à 2,5%.

Ces filtres permettent de réduire considérablement le nombre de chemins sans éliminer les chemins contribuant le plus aux oscillations EXAFS.

3.5.3 Améliorations récentes du code FEFF

De manière assez brève, les améliorations apportées au code FEFF (version 8) par rapport aux versions précédentes notamment FEFF6 sont surtout visibles dans le domaine XANES situé à basse énergie où la diffusion multiple est importante [16]. Sans entrer dans les détails du code FEFF8, le calcul en diffusion multiple y est effectué grâce à l'algorithme Rehr et Albers qui fournit une expression exacte des éléments de matrices G_0 . Dans les versions précédentes de FEFF, les éléments de matrice de G_0 étaient également calculés avec le même algorithme mais en utilisant un développement limité. D'après les relations 3.29 et 3.32 on peut exprimer $G(k)$ par

$$G(k) = G_0(k) + G_0(k)tG_0(k) + \dots \quad (3.42)$$

On peut alors réécrire cette expression par

$$G(k) = [1 - G_0(k)t]^{-1} G_0(k) \quad (3.43)$$

Dans FEFF8, le calcul de $G(k)$ se fait par inversion de la matrice $[1 - G_0(k)t]$. FEFF8 calcule de manière exacte les oscillations XAFS ce qui est très coûteux en temps de calcul (*Full Multiple Scattering calculation*).

Le calcul des oscillations XAFS effectué par FEFF8 est équivalent à celui présenté dans le formalisme de l'opérateur de chemin avec l'équation 3.34.

3.6 Simulations des spectres expérimentaux

Dans cette partie, nous présentons les logiciels (FEFF6 et FEFFIT) que nous avons utilisés pour simuler les spectres expérimentaux. Les clusters utilisés seront précisément détaillés à la fin de ce paragraphe.

3.6.1 Utilisation de FEFF6

Comme nous venons de le voir, FEFF6 permet de calculer les oscillations XAFS. Dans notre cas, nous ne calculons ces oscillations que dans la partie EXAFS. C'est

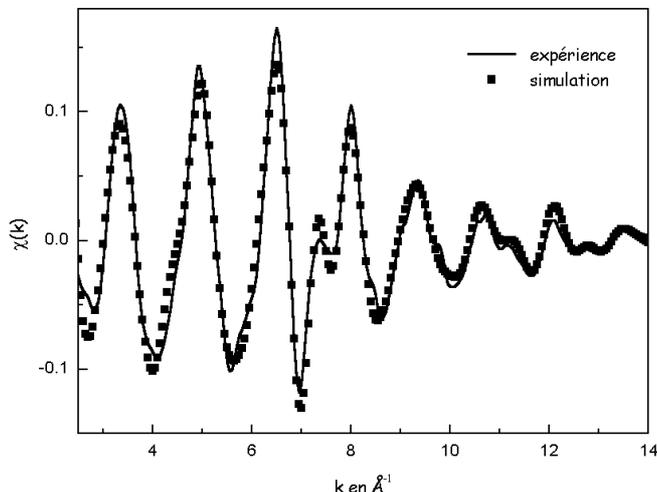


FIG. 3.9: Comparaison d'un spectre EXAFS obtenu sur un monocristal de cobalt au seuil K du Co avec une simulation obtenue avec FEFF6.

avec cette partie des oscillations que nous allons extraire l'information structurale de notre échantillon.

De manière plus pratique, le fichier d'entrée nécessaire pour faire tourner FEFF est un fichier comportant les coordonnées de chacun des atomes diffuseurs et de l'atome central constituant le cluster que nous souhaitons étudier ainsi que leur nature chimique. Nous y ajoutons l'orientation de la polarisation exprimée dans la maille du cluster, la température à laquelle les mesures EXAFS sont réalisées ainsi que la température de Debye. Ces deux températures permettent d'estimer l'agitation thermique grâce à un modèle simple de Debye. Le calcul des oscillations EXAFS s'effectue en quelques minutes.

Comme le montre la figure 3.9, les calculs théoriques sur des systèmes de structure connue donnent des résultats très satisfaisants.

3.6.2 Utilisation de FEFFIT

FEFFIT est un logiciel d'ajustement [17] qui permet de simuler les spectres expérimentaux dans le formalisme de la diffusion multiple. Dans la pratique, FEFFIT utilise tous les chemins de diffusion calculés dans le cluster aussi bien en diffusion simple qu'en diffusion multiple et ajuste la structure du cluster pour reproduire au mieux le spectre EXAFS expérimental. Ainsi, il est possible de déterminer la structure de notre échan-

tillon. Attardons-nous sur les paramètres qu'ajuste FEFFIT. Les paramètres dont nous nous sommes servis sont le facteur d'étiement homothétique du cluster que l'on note α , la température de Debye θ . FEFFIT peut également ajuster la température T à laquelle le spectre a été enregistré, l'amplitude de retrodiffusion amp ainsi que le décalage du seuil e_0 entre le pointage expérimental et le seuil calculé. Regardons comment FEFFIT ajuste la structure du cluster. FEFF6, ayant les coordonnées de chacun des atomes constituant le cluster initial génère tous les chemins de diffusion simple et multiple autour de l'atome central. Ces chemins ont une demi-longueur notée R_{eff} . FEFFIT fait varier la demi-longueur de ces chemins. On note R_{fit} les demi-longueurs de chacun des chemins après ajustement par FEFFIT. La relation reliant R_{fit} et R_{eff} est la suivante dans le cas d'une homothétie :

$$R_{fit} = R_{eff} (1 + \alpha) \quad (3.44)$$

Avec un unique paramètre α que l'on appellera par la suite facteur d'étiement, FEFFIT ajuste la structure du cluster initial. FEFFIT calcule ensuite le nouveau spectre EXAFS en tenant compte des nouveaux paramètres d'ajustement (θ , α , *etc.*....) à l'aide d'une formule du type 3.41 et effectue un ajustement par la méthode des moindres carrés. Ainsi avec quelques paramètres seulement, le spectre théorique est ajusté à celui obtenu expérimentalement.

3.6.3 FEFFIT et dépouillement traditionnel

Le succès récent du code FEFFIT vient des grands progrès effectués dans le domaine du calcul théorique des oscillations XAFS. Un autre type de dépouillement plus ancien existe, il utilise comme référence des spectres expérimentaux de composés de structure connue. Attardons-nous sur cette dernière méthode que l'on qualifiera par la suite de dépouillement traditionnel. Comme nous l'avons vu précédemment, la formule de l'EXAFS au seuil K en diffusion simple est :

$$\chi(k) = \sum_j - \frac{N_j^* |f_j(\pi)|}{kR_j^2} \exp\left(-\frac{2R_j}{\lambda(k)}\right) \exp(-2\sigma_j^2 k^2) \sin[2kR_j + 2\delta_1 + \arg(f_j(\pi))] \quad (3.45)$$

Cette formule comporte deux types d'information : des paramètres liés uniquement à la structure (R_j , N_j^* , σ_j^2) et ceux liés à la nature chimique de l'atome central et des atomes diffuseurs (δ_1 , $\arg(f_j(\pi))$, $|f_j(\pi)|$). Les programmes de dépouillement traditionnel ajustent les paramètres structuraux. Les paramètres liés à la nature chimique des atomes sont extraits de spectres expérimentaux de composés de référence ayant la même nature chimique et dont on connaît la structure.

Le signal EXAFS est la somme des contributions de chacune des couches j d'atomes. En effectuant la transformée de Fourier du signal EXAFS (équation 3.45), on obtient des pics représentant les différentes couches de voisins. En effectuant une transformée de Fourier inverse du premier pic, on sélectionne uniquement la contribution des premières couches pour avoir un nombre raisonnable de paramètres ajustables. Ayant ainsi isolé la contribution au signal EXAFS des premières couches de voisins, on peut alors déterminer leur paramètres structuraux.

Face à une telle technique de dépouillement traditionnel, FEFFIT offre de nombreux avantages. En effet, dans le cas du dépouillement traditionnel pour avoir un nombre restreint de paramètres à ajuster, nous nous limitons juste à la structure des premières couches de voisins autour de l'atome central. FEFFIT lui ajuste la structure du cluster en tenant compte non seulement de la totalité des chemins en diffusion simple mais aussi de tous ceux en diffusion multiple. Ainsi, on peut alors vérifier si la structure résultante de l'ajustement de FEFFIT est valable aussi bien pour les voisins proches que pour les voisins plus éloignés.

Dans notre cas, nous enregistrons le spectre EXAFS sous trois configurations de polarisation différentes pour favoriser des directions de liaisons différentes. FEFFIT ajuste la structure du cluster entrée au préalable pour les trois configurations simultanément tandis que nos programmes traditionnels traitent séparément les trois spectres expérimentaux. Ainsi FEFFIT permet d'obtenir des résultats d'une plus grande cohérence.

Il est à noter que FEFFIT utilise des fonctions amplitude et phase de diffusion calculées par FEFF. Cependant, il faut s'assurer au préalable, sur un échantillon de référence de composition chimique voisine et de structure cristallographique connue, que les phases et amplitudes calculées reproduisent correctement la réalité. On montre sur la figure 3.9 que les amplitude et phase du cobalt calculées par FEFF6 reproduisent bien les données expérimentales du cobalt massif.

Nous avons utilisé les deux techniques d'analyse et les résultats obtenus sont similaires pour la première couche de voisins.

3.6.4 Modèles de cluster utilisés dans FEFFIT

Afin de déterminer la structure de nos films minces de cobalt avec FEFFIT, nous avons utilisé différents modèles de cluster selon l'épaisseur du dépôt. Pour établir ces modèles, nous nous sommes inspirés des résultats d'EXAFS précédemment établis par O. Heckmann et al. dans [18], concernant des films minces de cobalt sur un substrat plat de cuivre Cu (001). Ces résultats structuraux indiquent que le cobalt a une structure tétragonale à faces centrées contrairement au cobalt massif qui a une structure

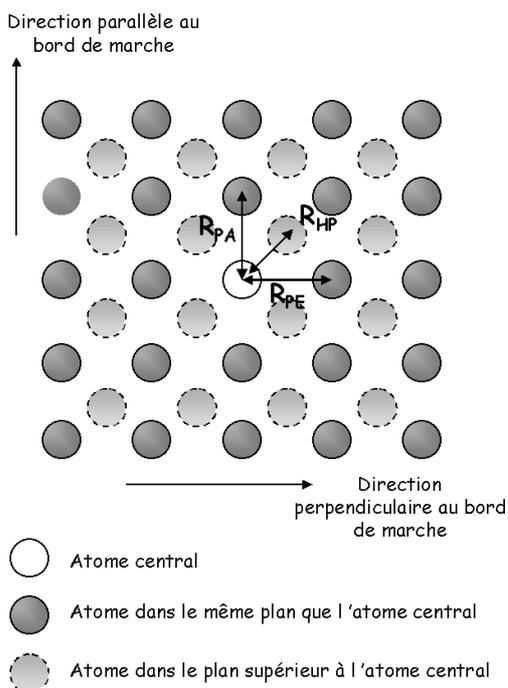


FIG. 3.10: Vue de dessus des atomes de cobalt dans le plan (0 0 1).

hexagonale. Nous distinguons par la suite trois types de liaisons dans la première couche de voisins autour des atomes de cobalt : \mathbf{R}_{PA} , \mathbf{R}_{PE} et \mathbf{R}_{HP} (figure 3.10).

Pour déterminer la structure des films minces de cobalt, trois types de modèles ont été créés (modèle "1 MC", modèle "2 MC" et modèle "1 MC recouverte") pour les faibles épaisseurs de 0,5 à 3 monocouches (MC). Pour les dépôts plus épais, un seul modèle est utilisé (modèle "film épais").

Nous décrirons dans le paragraphe suivant de manière détaillée le modèle "film épais" en précisant les caractéristiques du cluster et les paramètres ajustables de FEF-FIT que nous avons utilisés. Pour les autres modèles, nos remarques seront plus brèves étant donné que les mêmes types de paramètres ajustables sont utilisés.

Modèle "film épais"

Cluster initial du modèle "film épais" Dans ce cluster, les atomes de cobalt sont dans un réseau cubique à faces centrées avec une distance premiers voisins égale à 2,52 Å, cette valeur a été déterminée par l'analyse de la première couche de voisins en diffusion simple. Il est à noter que les calculs des différents chemins autour de l'atome central sont effectués dans une sphère d'environ 7 Å de rayon.

Paramètres ajustables du modèle "film épais" Comme nous l'avons précisé auparavant, FEFFIT étire ou rétrécit la structure initiale du cluster de manière homothétique grâce au facteur d'étirement α . Pour déceler d'éventuelles anisotropies structurales, nous avons dissocié les trois directions suivantes **PA**, **PE** et **HP**. **PA** correspond à la direction dans le plan des terrasses qui est parallèle au bord de marches c'est à dire à $[1\bar{1}0]$. **PE** est également dans le plan des terrasses mais perpendiculaire aux bords de marches $[110]$ tandis que **HP** est la direction normale au plan des terrasses c'est à dire la direction $[001]$. Ainsi chacune de ces trois directions a son propre facteur d'étirement qui est respectivement α_{PA} , α_{PE} et α_{HP} . Nous avons introduit dans les paramètres ajustables de FEFFIT non seulement les facteurs d'étirement, mais aussi pour la première couche de voisins une température de Debye pour chacune des directions suivantes : **PA**, **PE** et la direction de liaison hors plan. Étant donné que FEFF6 ne calcule que le désordre thermique et non le désordre structural statique, l'introduction de températures de Debye différentes pour les trois types de liaisons de la première couche (θ_{PA} , θ_{PE} et θ_{HP}) va permettre d'obtenir une estimation du désordre structural. Pour les chemins de diffusion plus longs, on prend une unique température de Debye θ .

Nous détaillons en annexe l'expression des demi-longueurs des premiers chemins de diffusion R_{fit} en fonction de α_{PA} , α_{PE} et α_{HP} .

Modèle "1 MC"

Cluster initial du modèle "1 MC" Le modèle "1MC" comme son nom l'indique est composé d'une monocouche de cobalt sur un substrat de cuivre (figure 3.11).

Dans ce modèle, les atomes de cuivre sont dans un réseau cubique à faces centrées avec une distance premiers voisins égale à 2,55 Å. La couche de cobalt est telle que les distances \mathbf{R}_{PA} et \mathbf{R}_{PE} sont de 2,52 Å. La distance hors-plan Co-Cu est de 2,52 Å. L'atome central est le seul atome de cobalt à se situer sur un site du réseau de volume. En effet, il se trouve à égale distance des quatre atomes de cuivre contenus dans la couche de cuivre la plus superficielle.

Il est à noter que pour les clusters "1 MC" et les suivants ("2 MC" et "1 MC recouverte"), nous n'avons pas introduit les marches du substrat pour deux raisons :

- la première est que pour les faibles épaisseurs de cobalt, les images de spectroscopie à effet tunnel (STM) nous montrent une réorganisation du substrat de cuivre et la formation de grands îlots plats de 30 à 60 Å de large.

- la seconde est que si on avait une croissance couche par couche et pas de réorganisation du substrat, certains atomes de cobalt situés au bord de marche auraient, dans leur plan, des atomes de cuivre comme voisins. Or puisque le cobalt et le cuivre sont

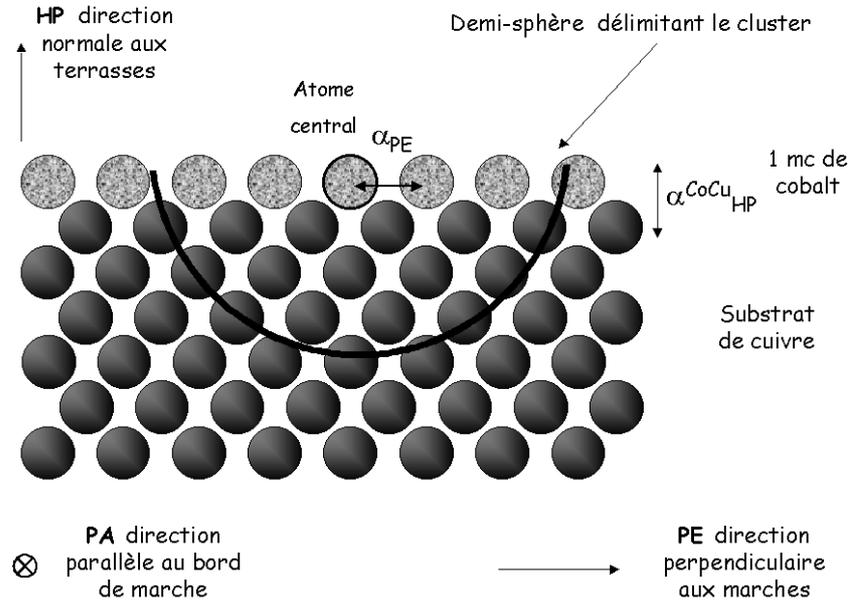


FIG. 3.11: Représentation schématique du modèle "1 MC" utilisé pour déterminer la structure des films de faibles épaisseurs de cobalt.

des éléments très proches dans le tableau périodique, leurs phase et amplitude de diffusion sont quasiment identiques ce qui justifie également l'emploi d'un cluster sans marche.

Paramètres ajustables du modèle "1 MC" Dans ce modèle, nous supposons que les atomes de cuivre ne bougent pas. Par contre, FEFFIT ajuste les positions des atomes de cobalt pour obtenir les meilleures concordances entre l'expérience et la théorie. Quelques calculs de R_{fit} sont présentés en annexe. Le schéma 3.11 indique les directions des différents facteurs d'étirement.

Modèle "2 MC"

Cluster initial du modèle "2 MC" Ce cluster est identique au modèle à 1 MC,

($\mathbf{R}_{PA} = \mathbf{R}_{PE} = 2,52\text{\AA}$) mais avec cette fois-ci 2 MC de cobalt et $\mathbf{R}_{HP}^{CoCo} = 2,52\text{\AA}$ et $\mathbf{R}_{HP}^{CoCu} = 2,52\text{\AA}$. Pour simuler le signal EXAFS de cette bicouche de cobalt. On place dans un premier temps l'atome central dans la position I dans le fichier d'entrée de FEFF6 puis ensuite dans la position II (figure 3.12). Le signal EXAFS de cette bicouche est alors la somme des contributions de chaque couche de cobalt.

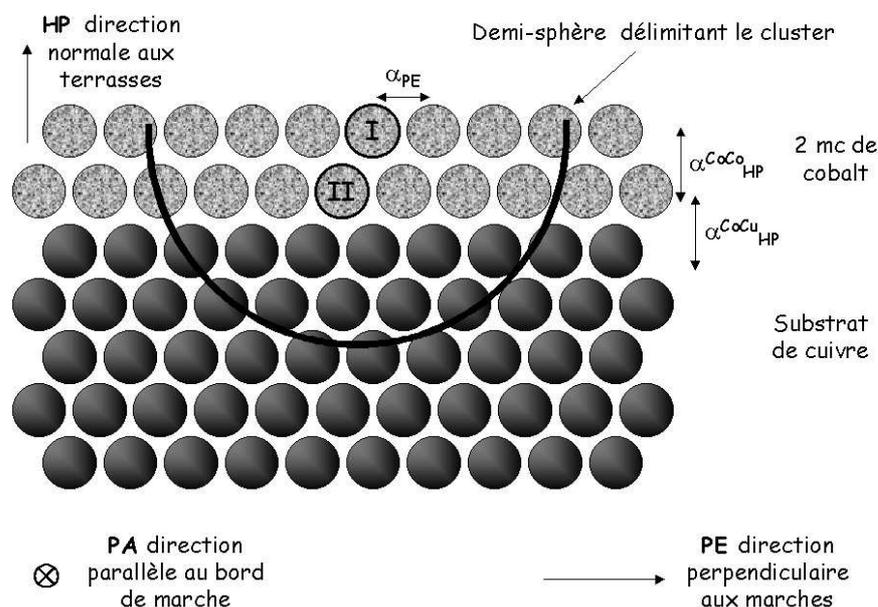


FIG. 3.12: Représentation schématique du modèle "2MC" utilisé pour déterminer la structure des films de faibles épaisseurs de cobalt.

Paramètres ajustables du modèle "2 MC" De la même manière que précédemment, les atomes de cuivre sont à une position fixe. Deux paramètres d'étirement dans le plan (dans les directions $[1\bar{1}0]$ et $[110]$) et deux hors plan sont introduits comme l'indique la figure 3.12 (un pour la liaison Co-Co, l'autre pour la liaison Co-Cu).

Modèle "1 MC recouverte"

Cluster initial du modèle "1 MC recouverte" Ce modèle est un modèle constitué d'1 MC de cobalt recouverte d'1 MC de cuivre. Ce cluster est identique à celui du modèle "2 MC", le seul changement est le remplacement des atomes de cobalt de la deuxième couche par des atomes de cuivre.

Paramètres ajustables du "1 MC recouverte" Les atomes de cuivre du substrat sont immobiles. Les atomes de cuivre de la couche superficielle suivront le même étirement dans le plan (001) que ceux de la couche de cobalt. On introduit deux facteurs d'étirement dans le plan et deux dans la direction **HP** (figure 3.13).

Les paramètres ajustables utilisés dans les différents modèles est résumé dans le tableau 3.1 :

α_{PA} , α_{PE} correspondent aux facteurs d'étirement dans le plan des terrasses (001). Les différents facteurs de type α_{HP} sont les facteurs d'étirement dans la direction

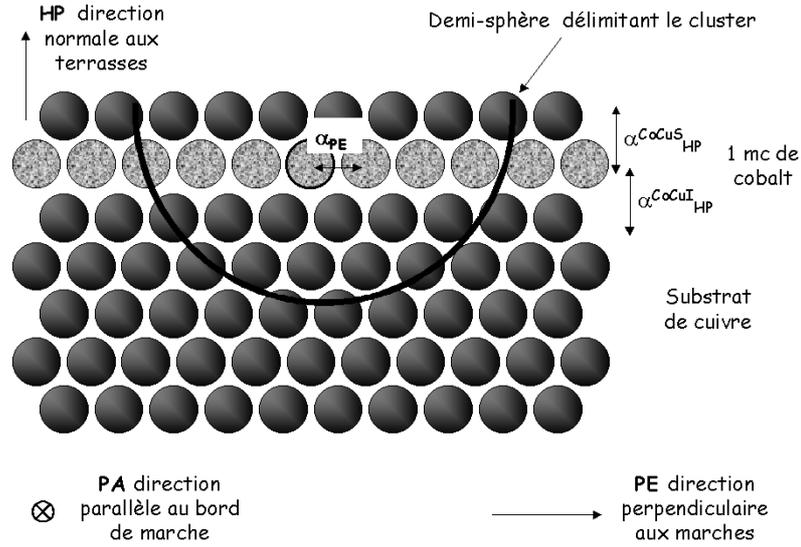


FIG. 3.13: Représentation schématique du modèle "1 MC recouverte" utilisé pour déterminer la structure des films de faibles épaisseurs de cobalt.

Modèle	Facteurs d'étirement	Température de Debye
Modèle "1MC"	$\alpha_{PA}, \alpha_{PE}, \alpha_{HP}^{CoCu}$	$\theta_{PA}, \theta_{PE}, \theta_{HP}^{CoCu}, \theta$
Modèle "2MC"	$\alpha_{PA}, \alpha_{PE}, \alpha_{HP}^{CoCo}, \alpha_{HP}^{CoCu}$	$\theta_{PA}, \theta_{PE}, \theta_{HP}^{CoCo}, \theta_{HP}^{CoCu}, \theta$
Modèle "1MC recouverte"	$\alpha_{PA}, \alpha_{PE}, \alpha_{HP}^{CoCuS}, \alpha_{HP}^{CoCuI}$	$\theta_{PA}, \theta_{PE}, \theta_{HP}^{CoCuS}, \theta_{HP}^{CoCuI}, \theta$
Modèle "film épais"	$\alpha_{PA}, \alpha_{PE}, \alpha_{HP}$	$\theta_{PA}, \theta_{PE}, \theta_{HP}, \theta$

TAB. 3.1: Tableau regroupant les différents paramètres utilisés dans les différents modèles de fit.

perpendiculaire aux terrasses. Les différents modèles utilisent une température de Debye (θ_{PA} , θ_{PE} , etc ...) différente pour chacun des chemins en diffusion simple de la première couche de voisins. Cette température de Debye permet d'estimer le désordre structural dans la première couche de voisin. Une température de Debye unique notée θ est utilisée pour les autres chemins. Nous utilisons donc environ 7 paramètres voire 9 pour "fitter" les trois spectres EXAFS.

3.7 Conclusion

Les oscillations XAFS considérées longtemps comme une curiosité sont aujourd'hui largement utilisées dans la détermination structurale des matériaux. La technique de l'EXAFS est une technique sensible à l'ordre à courte distance. Contrairement à la diffraction de surface, elle ne nécessite pas que l'échantillon ait une structure avec ordre à grande distance. On la qualifie souvent de sonde locale autour de l'atome excité. Un de ses atouts fort est sa sélectivité : elle permet d'obtenir des informations cristallographiques uniquement sur les atomes environnant l'élément excité. Enfin, la polarisation linéaire du rayonnement synchrotron permet de déterminer très précisément des distorsions structurales induites dans un film mince.

Ce chapitre consacré à la théorie de l'EXAFS, nous a permis de nous attarder un peu sur la théorie de la diffusion multiple dans le formalisme des fonctions de Green. Il laisse entrevoir les différents problèmes auxquels ont été confrontés les théoriciens pour calculer les oscillations XAFS, mais l'évolution des performances des calculateurs ainsi que l'optimisation des techniques de calcul permettent maintenant de reproduire très précisément les oscillations XAFS sur de larges gammes d'énergie. Au cours du temps, des approximations plus ou moins grossières ont été envisagées pour contourner les limitations de calcul comme l'approximation de la diffusion simple ou bien celle de l'onde plane qui sont aujourd'hui obsolètes.

Pour finir nous avons décrit les deux programmes FEFF6 et FEFFIT que nous avons utilisés pour extraire l'information structurale de nos spectres EXAFS expérimentaux. Ces deux logiciels sont bien adaptés à nos films minces de cobalt. Grâce à des modèles adéquates de clusters que nous avons exposés dans ce chapitre, nous montrerons dans la partie consacrée aux dépouillements de l'EXAFS que les données expérimentales sont bien reproduites par les calculs théoriques de FEFF6.

3.8 Annexe

Dans cette annexe, nous allons de manière détaillée exposer les calculs qui nous ont permis d'exprimer les demi-longueurs R_{fit} des chemins de diffusion simple et multiple

en fonction des facteurs d'étirement α_i .

Les positions des atomes du cluster sont exprimées dans la base $(\vec{\mathbf{PE}}, \vec{\mathbf{PA}}, \vec{\mathbf{HP}})$ centrée sur l'atome central. Nous rappelons que la direction notée \mathbf{PE} est la direction $[110]$, la direction \mathbf{PA} est $[1\bar{1}0]$ et \mathbf{HP} est la direction $[001]$. On note R_{eff} la demi-longueur du chemin de diffusion calculée par FEFF dans le cluster initial.

3.8.1 Modèle "film épais"

Chemin en diffusion simple

Ce chemin part de l'atome central de coordonnées $(0, 0, 0)$ passe par un atome diffuseur de coordonnées (x, y, z) puis retourne directement sur l'atome central. R_{eff} s'exprime par :

$$R_{eff} = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} \quad (3.46)$$

On note R_{fit} la demi-longueur de ce chemin de diffusion après ajustement par FEFFIT :

$$R_{fit} = \sqrt{(1 + \alpha_{PE})^2 x^2 + (1 + \alpha_{PA})^2 y^2 + (1 + \alpha_{HP})^2 z^2} \quad (3.47)$$

Lorsque nous avons un unique facteur d'étirement $R_{fit} = (1 + \alpha) R_{eff}$. Essayons d'exprimer R_{fit} avec les 3 facteurs d'étirement avec le même type d'expression. Puisque ces termes d'étirement sont petits, nous négligeons les termes d'ordre 2 en α_i . Ainsi on a :

$$R_{fit} = R_{eff} \sqrt{1 + \frac{2\alpha_{PE}x^2 + 2\alpha_{PA}y^2 + 2\alpha_{HP}z^2}{R_{eff}^2}} \quad (3.48)$$

En supposant que $\frac{2\alpha_{PE}x^2 + 2\alpha_{PA}y^2 + 2\alpha_{HP}z^2}{R_{eff}^2}$ est petit devant 1 et en utilisant un développement limité, on obtient :

$$R_{fit} = R_{eff} \left(1 + \frac{x^2}{R_{eff}^2} \alpha_{PE} + \frac{y^2}{R_{eff}^2} \alpha_{PA} + \frac{z^2}{R_{eff}^2} \alpha_{HP} \right) \quad (3.49)$$

Chemin de diffusion d'ordre 3

Un chemin de diffusion d'ordre 3 fait intervenir deux atomes diffuseurs. On le qualifie d'ordre trois car ce chemin se décompose en 3 branches (figure 3.14). On note (x_1, y_1, z_1) les coordonnées du premier atome diffuseur et (x_2, y_2, z_2) celles du second. Les différentes notations utilisées lors du calcul sont visualisées sur la figure 3.14.

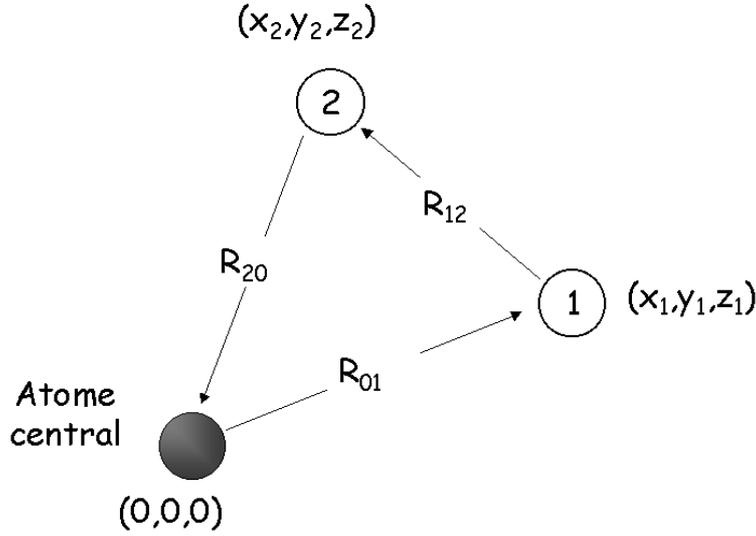


FIG. 3.14: Schéma permettant de visualiser les notations utilisées dans les calculs.

$$R_{fit} = R_{eff} \left(\begin{array}{l} 1 + \left(\frac{(0-x_1)^2}{R_{01} \times 2R_{eff}} + \frac{(x_1-x_2)^2}{R_{12} \times 2R_{eff}} + \frac{(x_2-0)^2}{R_{20} \times 2R_{eff}} \right) \alpha_{PE} + \\ \left(\frac{(0-y_1)^2}{R_{01} \times 2R_{eff}} + \frac{(y_1-y_2)^2}{R_{12} \times 2R_{eff}} + \frac{(y_2-0)^2}{R_{20} \times 2R_{eff}} \right) \alpha_{PA} + \\ \left(\frac{(0-z_1)^2}{R_{01} \times 2R_{eff}} + \frac{(z_1-z_2)^2}{R_{12} \times 2R_{eff}} + \frac{(z_2-0)^2}{R_{20} \times 2R_{eff}} \right) \alpha_{HP} \end{array} \right) \quad (3.50)$$

Chemin de diffusion d'ordre n

De manière générale pour un chemin de diffusion d'ordre n on a :

$$R_{fit} = R_{eff} \left(\begin{array}{l} 1 + \left(\frac{(0-x_1)^2}{R_{01} \times 2R_{eff}} + \dots + \frac{(x_{n-2}-x_{n-1})^2}{R_{n-1,n-2} \times 2R_{eff}} + \frac{(x_{n-1}-0)^2}{R_{n-1,0} \times 2R_{eff}} \right) \alpha_{PE} + \\ \left(\frac{(0-y_1)^2}{R_{01} \times 2R_{eff}} + \dots + \frac{(y_{n-2}-y_{n-1})^2}{R_{n-1,n-2} \times 2R_{eff}} + \frac{(y_{n-1}-0)^2}{R_{n-1,0} \times 2R_{eff}} \right) \alpha_{PA} + \\ \left(\frac{(0-z_1)^2}{R_{01} \times 2R_{eff}} + \dots + \frac{(z_{n-2}-z_{n-1})^2}{R_{n-1,n-2} \times 2R_{eff}} + \frac{(z_{n-1}-0)^2}{R_{n-1,0} \times 2R_{eff}} \right) \alpha_{HP} \end{array} \right) \quad (3.51)$$

Un tel chemin comporte n branches et $(n-1)$ atomes diffuseurs.

3.8.2 Modèle "1MC"

Dans ce type de modèle, nous avons imposé aux atomes de cuivre du substrat de rester immobiles lors de l'ajustement de la structure du cluster. Ainsi, la couche des atomes de cobalt va plus ou moins s'étirer dans le plan (001) et la distance entre le

plan des atomes de cobalt et le premier plan de cuivre va également varier lors de l'ajustement effectué par FEFFIT. Dans ce cas, les calculs des R_{fit} en fonction des coefficient d'étirement est plus complexe, plusieurs cas sont à discerner. Voici deux cas particuliers de chemins rencontrés.

Chemin en diffusion simple atome central-atome de cobalt

Dans ce cas particulier, l'atome diffuseur de cobalt a comme coordonnées $(x, y, 0)$. Ainsi, on exprime R_{fit} de la manière suivante :

$$R_{fit} = R_{eff} \left(1 + \frac{\alpha_{PE}x^2 + \alpha_{PAY}^2}{R_{eff}^2} \right) \quad (3.52)$$

Chemin de diffusion simple atome central-atome de cuivre

Si l'atome de cuivre se situe dans la première couche c'est à dire la couche la plus superficielle du substrat alors :

$$R_{fit} = R_{eff} \left(1 + \frac{\alpha_{HP}^{CoCu} z^2}{R_{eff}^2} \right) \quad (3.53)$$

Dans ce cas, seul le coefficient d'étirement dans la direction hors plan α_{HP}^{CoCu} intervient

Si maintenant le cuivre se situe dans la $n^{ième}$ couche de cuivre, on a :

$$R_{fit} = R_{eff} \left(1 + \frac{\alpha_{HP}^{CoCu} (z_{CoCu}^2 + (n-1) z_{CoCu} d_{Cu})}{R_{eff}^2} \right) \quad (3.54)$$

Avec z_{CoCu} étant la distance dans le cluster initial entre le plan des atomes de cobalt et le premier plan de cuivre. d_{Cu} est la distance interplanaire entre deux plans d'atomes de cuivre consécutifs.

Bibliographie

- [1] H. Fricke, Phys. Rev. **16**, 202 (1920).
- [2] G. Hertz, Z. Phys. **3**, 19 (1920).
- [3] E. A. Stern, Phys. Rev. B **10**, 327 (1974).
- [4] F. W. Lytle, D. E. Sayers et E. A. Stern, Phys. Rev. B **11**, 4825 (1975).
- [5] E. A. Stern, D. E. Sayers et F. W. Lytle, Phys. Rev. B **11**, 4836 (1975).
- [6] H. H. Tawad et D. E. Watt, Int. J. Radiat. Biol. Relat. Stud. Phys., Chem Med., **50**, 665 (1986).
- [7] A. Bianconi, L. Incoccia et S. Stipcich (Eds.), EXAFS and Near Edge Structure, Springer-Verlag, Berlin, (1983).
- [8] H el ene Magnan, Th ese de l'Universit  Paris-Sud (Orsay), 1990.
- [9] Claire Levelut, Th ese de l'Universit  Pierre et Marie Curie (Paris), 1991.
- [10] Delphine Cabaret, Th ese de l'Universit  Pierre et Marie Curie (Paris), 1997.
- [11] J. J. Rehr, R. C. Albers, Phys Rev B **41**, 8139 (1990).
- [12] J. J. Rehr, Jpn. J. Appl. Phys. **32** (1993) Suppl. 32-2, pp. 8-12.
- [13] S. I. Zabinsky, J. J. Rehr, A. Ankudinov, R. C. Albers et M. J. Eller, Phys. Rev. B **52**, 2995 (1995).
- [14] X- Ray Absorption : Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES; Edited by D. C. K oninsberger and R. Prins (New York 1988).
- [15] P. A. Lee, P. H. Citrin, P. Eisenberger, B. M. Kincaid, Rev. Mod. Phys. **53**, 769 (1981).
- [16] A. L. Ankudinov, B. Ravel, J. J. Rehr, S. D. Conradson, Phys. Rev. B **58**, 7565 (1998).
- [17] M. Newville, B. Ravel, D. Haskel, J. J Rehr, E. A. Stern et Y. Yacoby Physica B **208-209**, 154 (1995).
- [18] O. Heckmann, H. Magnan, P. Le F evre, D. Chandesris et J.J. Rehr, Surf. Sci. **312**, 62 (1994).

Chapitre 4

Description des expériences

Ce chapitre est consacré aux descriptions des dispositifs expérimentaux utilisés dans ce travail de thèse. Dans la première partie, consacrée à l'EXAFS de surface utilisant le rayonnement synchrotron, nous décrivons la ligne wiggler DW21 installée sur l'anneau DCI du Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique (LURE, Orsay). Nous spécifierons tout d'abord les caractéristiques de DCI et du rayonnement synchrotron qu'il produit. Puis nous nous attarderons sur le bâti expérimental d'EXAFS de surface ainsi que sur les modes de détection utilisés. Le dispositif expérimental des mesures magnéto-optiques Kerr réalisées avec Fabrice Scheurer (IPCMS, Strasbourg) sera ensuite exposé. Puis, nous décrivons le microscope à effet tunnel (STM), qui nous a permis d'étudier la morphologie de nos dépôts de cobalt en collaboration avec Luc Barbier (SPCSI, CEA, Saclay). Pour conclure ce chapitre, nous exposerons le protocole expérimental de nettoyage des substrats vicinaux de cuivre ainsi que les conditions d'évaporation des films minces de cobalt. Nous en profiterons également pour décrire les différentes mesures permettant d'évaluer l'épaisseur du dépôt de cobalt

4.1 Description de DCI et de la ligne de lumière DW21

L'EXAFS a connu un essor important grâce à l'apparition des installations produisant du rayonnement synchrotron. Nous nous attarderons dans ce paragraphe sur l'origine, la production et les caractéristiques d'un tel rayonnement. Nous décrivons assez brièvement l'anneau de stockage DCI du LURE où nous avons réalisé nos expériences d'EXAFS de surface ainsi que la ligne de lumière DW21.

4.1.1 Production du rayonnement synchrotron

Le rayonnement synchrotron provient du fait que toute particule chargée rayonne lorsqu'elle est accélérée. La particularité du LURE est d'utiliser comme particules chargées des positons. Ces particules sont produites par bombardement d'une plaque de tungstène avec des électrons très énergétiques. Elles sont ensuite accélérées par un accélérateur linéaire puis injectées dans l'anneau de stockage DCI avec une énergie de 1,85 GeV. Cet anneau était auparavant utilisé pour étudier les collisions de particules d'où son appellation Dispositif de Collisions dans l'Igloo (DCI). Il est désormais totalement dédié à la fabrication du rayonnement synchrotron. La singularité la plus notable de DCI est qu'il utilise des positons comme particules chargées et non des électrons comme dans les autres centres de production de rayonnement synchrotron. Cette particularité permet d'obtenir des temps de vie de faisceau bien meilleurs qu'avec des électrons. En effet, le vide atteint dans l'anneau est de 10^{-10} à 10^{-11} mbar, des ions provenant de chocs entre les molécules résiduelles et le faisceau de positons sont majoritairement de charge positive, ainsi ils sont repoussés par le faisceau et altèrent moins la course des positons.

L'anneau DCI est composé de sections droites et de sections courbes. La trajectoire des positons est infléchiée dans les sections courbes par des champs magnétiques intenses de 1,6 T. Dans ces parties courbes, les positons rayonnent car ils subissent une accélération centripète. Ce rayonnement est émis tangentiellement à la courbure de la trajectoire des positons. Cette "directionnalité" est due au fait que les positons soient relativistes. Une cavité radiofréquence est installée sur le parcours des positons et leur fournit une impulsion à chacun de leur passage afin de compenser l'énergie qu'ils ont perdue en rayonnant. L'une des caractéristiques importantes du rayonnement synchrotron est qu'il est émis dans le plan de l'orbite des positons et polarisé linéairement dans ce même plan. Ceci nous permet par exemple en EXAFS de surface de mesurer les anisotropies structurales des cristaux.

La ligne de lumière grâce à laquelle nous avons réalisé nos mesures d'EXAFS de surface est située en aval d'une section droite de l'anneau dans laquelle a été inséré un wiggler. Un wiggler est composé de cinq aimants supraconducteurs refroidis à l'hélium liquide (4,2K) qui dévient les positons en leur faisant suivre plusieurs zig-zag (schéma 4.1). Le nombre de photons ainsi créé est plus important que celui obtenu dans une partie courbe de l'anneau car l'intensité du rayonnement produite dans chaque zig-zag s'additionne et les particules rayonnent d'autant plus que le rayon d'inflexion du faisceau est petit. En sortie de wiggler, plusieurs lignes de lumière mènent le rayonnement jusqu'aux bâtis expérimentaux.

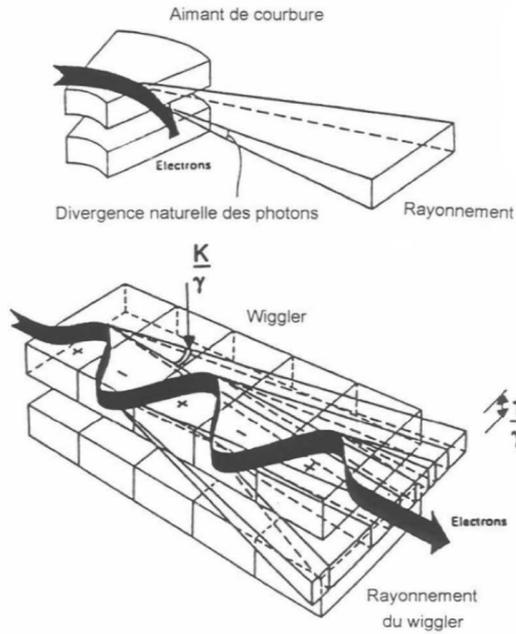


FIG. 4.1: Description schématique du rayonnement obtenu dans une section courbe de l'anneau et dans un wiggler. La flèche noire représente la trajectoire des positons.

4.1.2 Description de la ligne de lumière DW21

Dans ce paragraphe, nous décrivons les différentes optiques rencontrées successivement par le faisceau à la sortie du wiggler jusqu'au bâti expérimental d'EXAFS de surface (figure 4.2). La ligne DW21 ayant été décrite en détail dans la thèse de Patrick Le Fèvre [1], je la décrirai de manière brève dans ce chapitre.

Bien que directionnel, le rayonnement synchrotron présente cependant une légère divergence horizontale (2 mrad) et verticale (0,6 mrad) à l'entrée de la ligne DW21. S'il n'était pas refocalisé dans la ligne le conduisant vers l'expérience, il mesurerait 8,2 cm de large et 2,5 cm de haut sur un échantillon situé dans le bâti expérimental à 41 m du wiggler. Ceci montre la nécessité d'une focalisation verticale et horizontale du faisceau de photons pour qu'il soit le moins dispersé et le plus intense possible.

La focalisation verticale du faisceau polychromatique se fait grâce à un miroir légèrement courbé situé en aval du wiggler. Le miroir est situé entre deux fenêtres de béryllium avec un vide de 1.10^{-9} mbar afin d'éviter la pollution de sa surface.

Cette réflexion du faisceau polychromatique est régie par la loi de Snell-Descartes

$$n_1 \sin i_1 = n_2 \sin i_2 \quad (4.1)$$

n_1 l'indice du milieu régnant entre les deux fenêtres de béryllium contenant le

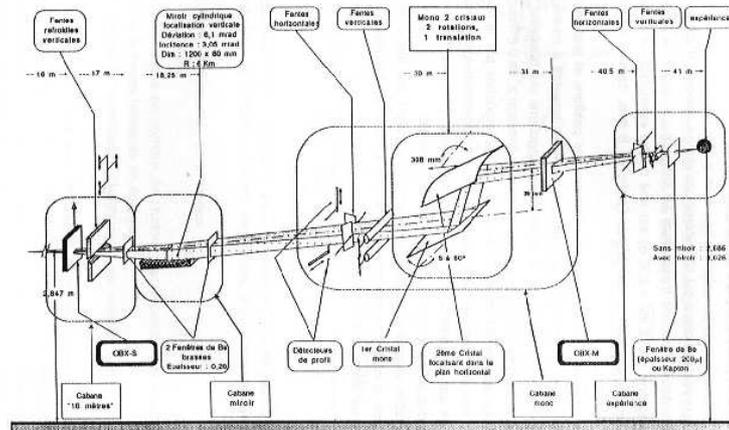


FIG. 4.2: Description schématique de la ligne DW21 et de ses différentes optiques.

miroir est assimilable à l'indice optique du vide égal à 1 et n_2 est celui du miroir. Dans la gamme des rayons X, l'indice des matériaux est proche de 1, ainsi $\frac{n_2}{n_1} \leq 1$: ceci explique l'existence d'un angle critique d'incidence en dessus duquel l'onde réfléchie par le miroir est maximale et l'onde transmise minimale. La courbure verticale du miroir permet de refocaliser le rayonnement verticalement. Le miroir utilisé sur la ligne DW21 est un bloc de AlMg₇ recouvert de 100 microns de Ni, lui-même recouvert de rhodium (350Å). Finalement, 90 % des rayons X compris entre 3 et 22 keV sont réfléchis. Les photons d'énergie supérieure à 22 keV sont absorbés par le rhodium et ceux d'énergie inférieure à 3 keV sont absorbés par les fenêtres de béryllium. Le faisceau incident sur le miroir est un faisceau blanc, un refroidissement à eau est donc nécessaire pour refroidir le miroir et le maintenir à une température constante pour éviter toute dérive.

La mesure du spectre EXAFS consiste en une mesure du coefficient d'absorption en fonction de l'énergie des photons. Cette mesure nécessite par conséquent une monochromatisation du flux de photons. Ceci est rendu possible grâce à un monochromateur de type "deux cristaux" représenté sur la figure 4.3. Ce monochromateur est situé à 30 m en aval du wiggler. Il est constitué de deux monocristaux de silicium (111) ou (311) ou de germanium (220). Le choix des cristaux se fait en fonction de la gamme d'énergie que l'on balaie, de la résolution énergétique ou du flux de photons que l'on souhaite utiliser.

Le premier cristal monochromatise le faisceau blanc. En effet, selon la loi de Bragg, seules les longueurs d'onde λ telles que :

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (4.2)$$

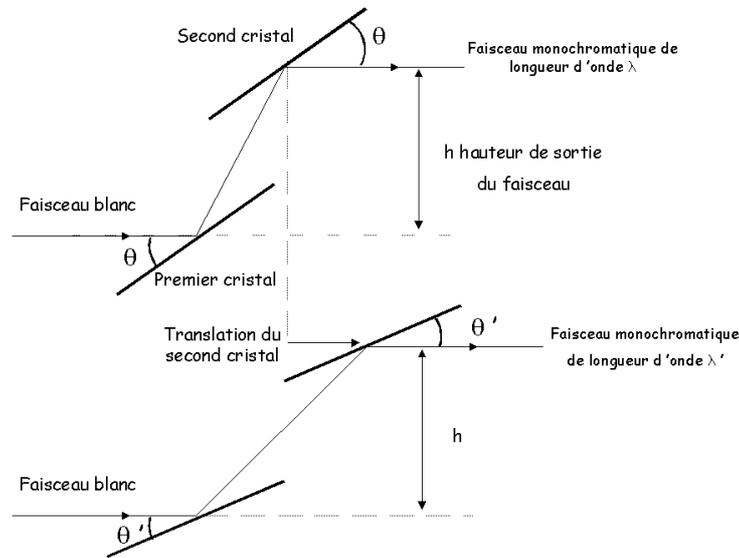


FIG. 4.3: *Principe du monochromateur à deux cristaux.*

sont réfléchies avec n un nombre entier représentant l'ordre de réflexion, d la distance interplanaire entre deux plans d'atomes consécutifs dans le premier cristal et θ l'angle d'incidence entre la surface du cristal et le faisceau incident. La variation en énergie de photons du faisceau émergent est donc obtenue en faisant varier l'inclinaison θ des cristaux (schéma 4.3). De même que le miroir, le premier cristal qui reçoit le faisceau blanc, est refroidi par un circuit d'eau. Le débit du liquide doit être relativement faible afin de ne pas engendrer de vibrations et pour que l'angle d'incidence reste stable lors de la mesure.

Le second cristal du monochromateur a pour rôle de faire sortir le rayonnement monochromatique parallèlement à la lumière blanche, il est donc rigoureusement parallèle au premier cristal. Il possède un mouvement de translation horizontale afin d'avoir le flux de photons sortant toujours à la même hauteur h (schéma 4.3). Dans le monochromateur de la ligne DW21, il y a possibilité de courber le second cristal avec un axe de courbure situé dans le plan d'incidence des photons. Cette courbure est réalisée grâce à un cristal à ailettes [1] et permet de focaliser horizontalement le faisceau.

Pour nos expériences au seuil K du cobalt (7709 eV), nous utilisons pour le monochromateur soient les cristaux de silicium (311) plans permettant d'obtenir une meilleure résolution (de l'ordre de électron-volt) soient les cristaux Si (111) courbés qui ont une résolution moins performante (2 à 3 eV), mais qui offrent un flux plus important de photons. Pour les faibles épaisseurs de cobalt, nous avons utilisé les cristaux de Si (111).

Pour que le flux de photons en sortie du monochromateur ne soit pas nul, les deux cristaux doivent être parfaitement parallèles. Un système d'asservissement permet d'atteindre ce parallélisme [1]. Pour faire varier l'énergie des photons, le premier cristal incrémente sa valeur de θ puis le second ajuste son inclinaison. Le flux de photons en sortie du monochromateur est mesuré simultanément avec le mouvement du second cristal et ce dernier est arrêté lorsque le flux est maximal. La mesure du nombre de photons en sortie du monochromateur se fait grâce au dispositif suivant : une feuille d'aluminium est placée sur la trajectoire du faisceau monochromatique à l'entrée de l'expérience d'EXAFS de surface sous ultra-vide. Les photons frappant cette feuille ionisent le métal ; les électrons émis sont multipliés par un système de dynodes puis collectés sur une anode. Le courant alors mesuré sur l'anode est proportionnel au flux de photons.

4.2 Description de l'expérience SEXAFS

La chambre expérimentale où ont lieu les mesures d'EXAFS de surface est située à une quarantaine de mètres du wiggler. Ce bâti sous ultra-vide est directement connecté à la ligne de lumière. Une fenêtre de béryllium sépare la ligne qui est à une pression de 1.10^{-7} mbar de la chambre expérimentale. Cette dernière est pompée à l'aide de pompes turbomoléculaires, ionique et une pompe cryogénique afin d'obtenir une pression de base de 2.10^{-10} mbar . La préparation de l'échantillon (bombardement ionique et recuit) sont effectués dans cette chambre ainsi que les évaporations. Les spectroscopies Auger et de diffraction d'électrons lents (DEL) sont également réalisées dans cette enceinte. L'échantillon est monté sur un porte-échantillon lui même vissé sur un manipulateur permettant des mouvements de rotation de l'échantillon autour de l'axe Z (schéma 4.4). Cette rotation permet de changer l'angle d'incidence des photons par rapport à la surface de l'échantillon. Des mouvements de translation sont également possibles dans le plan (X,Y) ainsi que selon Z (schéma 4.4). Ce manipulateur possède également un circuit de refroidissement à travers lequel un courant régulier d'azote liquide peut circuler. Ce dispositif permet d'obtenir un refroidissement relativement stable au cours des mesures d'EXAFS de l'ordre de 80K. Un thermocouple placé à quelques millimètres de l'échantillon permet de contrôler la température de ce dernier aussi bien au cours du refroidissement que pendant le recuit.

Dans la chambre de préparation attenante à ce bâti expérimental, un dispositif permet de faire varier l'azimut de l'échantillon. Ainsi les échantillons de cuivre à marches Cu(1 1 n) peuvent être orientés de telle sorte que la polarisation du rayonnement soit parallèle aux bords de marches, dans le plan des terrasses et perpendiculaire aux bords de marches ou perpendiculaire au plan des terrasses. Ces différentes orientations de la

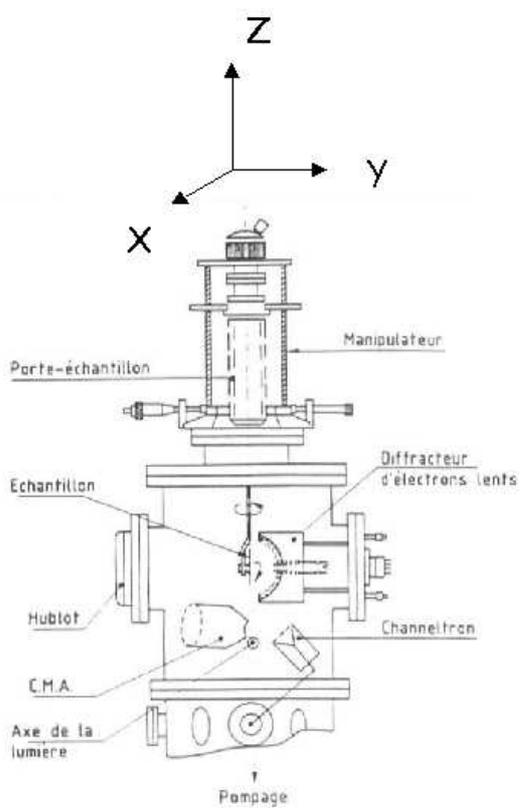


FIG. 4.4: Bâti expérimental d'EXAFS de surface.

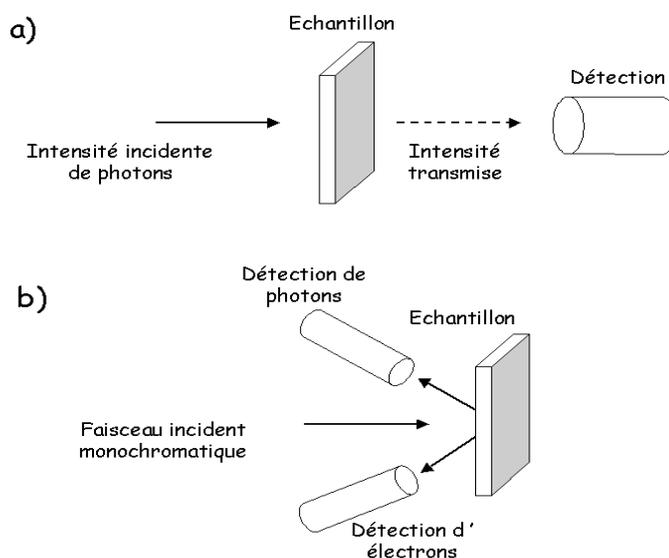


FIG. 4.5: Les deux types de montages utilisés en EXAFS. Le schéma a représente un montage en transmission. Le montage b est celui utilisé en EXAFS de surface.

polarisation par rapport à l'échantillon permettent de favoriser certaines directions de liaisons lors des mesures d'EXAFS de surface (paragraphe 3.3.5 et chapitre 8).

4.2.1 Mode de détection en EXAFS de surface

Les mesures classiques d'EXAFS sont réalisées en transmission comme le schématise la figure 4.5.a.

Dans le cas de l'EXAFS de surface, un tel montage n'est alors plus adéquat. En effet, dans un montage en transmission, l'échantillon doit avoir une épaisseur inférieure à un micron pour qu'une intensité de photons soit transmise or notre échantillon a une épaisseur de 2 millimètres ce qui exclut cette configuration de détection. Nous utilisons un montage différent pour extraire le signal EXAFS de films minces évaporés sur un substrat (schéma 4.5.b). La méthode de détection doit être telle que le signal du film mince ne soit pas noyé dans celui du substrat. Par conséquent, deux principes de détection sont envisageables soit une technique sensible à la surface soit une technique qui ne détecte que le signal provenant de l'adsorbat. Nous présentons dans ce paragraphe les deux techniques de détection utilisées : la détection d'électrons et la détection de fluorescence.

Lors des mesures EXAFS, on se place à l'un des seuils d'absorption de l'élément dont on souhaite étudier l'environnement. Lorsque l'énergie des photons est supérieure à celle du seuil, un électron de coeur est arraché, laissant l'atome avec un trou dans

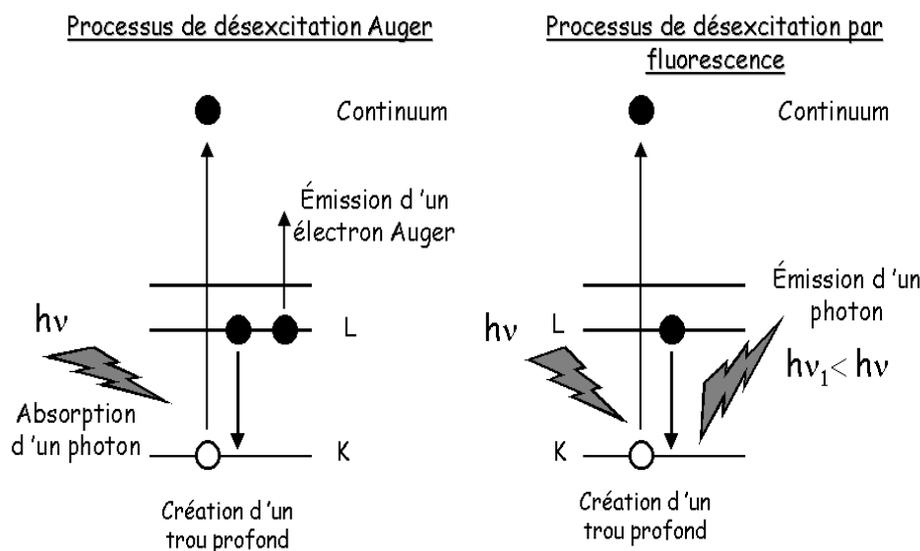


FIG. 4.6: *Processus de relaxation d'une lacune dans les niveaux de coeur.*

les niveaux de coeur c'est à dire dans une configuration très instable. Deux processus compétitifs, la fluorescence et l'émission d'un électron Auger, relaxent cet état excité (schéma 4.6). Ces deux phénomènes de relaxation sont proportionnels à l'absorption.

Détection d'électrons

La détection en électrons appelée encore par son substantif anglo-saxon *total yield electron mode* consiste à détecter l'ensemble des électrons émis par l'échantillon : c'est à dire les électrons de coeur, les électrons Auger et les électrons secondaires. Ces derniers sont générés par les électrons de coeur et les électrons Auger assez énergétiques qui en entrant en collision avec des atomes arrachent des électrons de couches plus superficielles. J. Stöhr et al. ont montré que ce nombre total d'électrons collectés est proportionnel au nombre d'électrons Auger émis et par conséquent proportionnel à l'absorption [2]. La majorité des électrons collectés sont des électrons secondaires ayant une profondeur d'échappement de l'ordre de 100 Å (schéma 4.7). Ce type de détection permet donc de sonder une épaisseur de l'ordre de 50 couches atomiques. Il est donc relativement sensible à la surface et est très utilisé en EXAFS de surface. La limitation de cette méthode de détection provient de la proportion des électrons émis par le substrat par rapport à ceux émis par la surface. En effet, ces électrons provenant du substrat ne sont pas porteurs du signal EXAFS et contribuent à augmenter le bruit statistique ce qui a pour conséquence de diminuer le rapport signal EXAFS sur bruit (bruit étant proportionnel à la racine carrée du nombre de coups). Dans le cas du

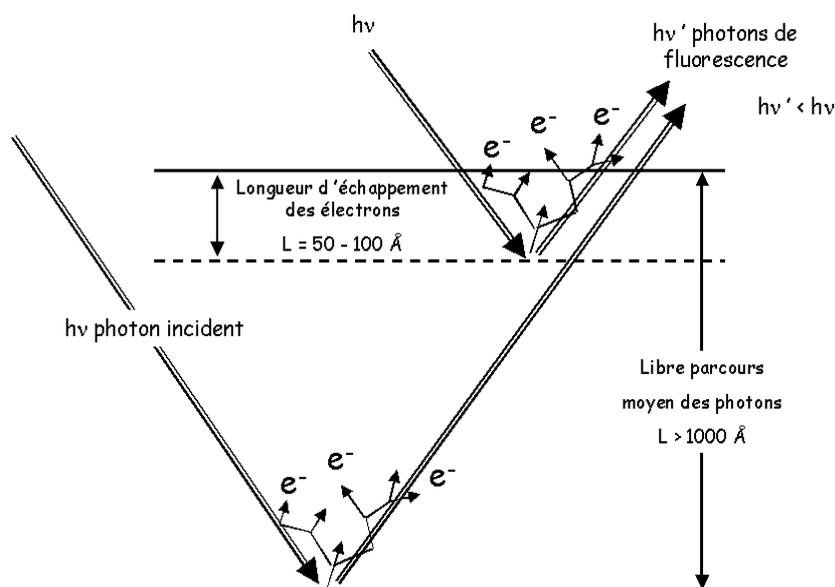


FIG. 4.7: Schématisation de la profondeur d'échappement des électrons et des photons de fluorescence.

système Co/Cu, cette technique de détection est adaptée pour des épaisseurs de cobalt supérieures à trois monocouches.

Détection par fluorescence

L'angle solide du détecteur de fluorescence collecte tous les types de photons émis par l'échantillon c'est à dire les photons émis par l'adsorbat, le substrat et les photons diffusés. Une sélection en énergie des photons permet de comptabiliser uniquement ceux provenant de l'adsorbat. Cette détection est effectuée grâce à un détecteur solide Camberra multi-éléments. Il possède 7 cristaux de Ge refroidis à l'azote liquide. Ce détecteur est placé à 90° du faisceau incident pour diminuer l'intensité des photons diffusés par l'échantillon. Il est maintenu sous un vide de $10^{-1} - 10^{-2}$ mbar et les cristaux de Ge sont protégés par une fenêtre de béryllium.

De manière pratique pour les films de Co/Cu, l'intensité de la raie K_α du cobalt est mesurée en fonction de l'énergie des photons incidents. L'intensité de cette raie est, elle aussi, proportionnelle à l'absorption. Le libre parcours moyen des photons de fluorescence est de l'ordre de quelques milliers d'angströms, cette technique est donc peu sensible à la surface (schéma 4.7). Par contre, elle permet d'isoler la contribution de la couche de cobalt au signal EXAFS alors que pour la mesure en détection d'électrons sont comptés en majorité des électrons secondaires provenant du substrat.

Cette méthode de détection par fluorescence est adaptée à l'étude des films minces

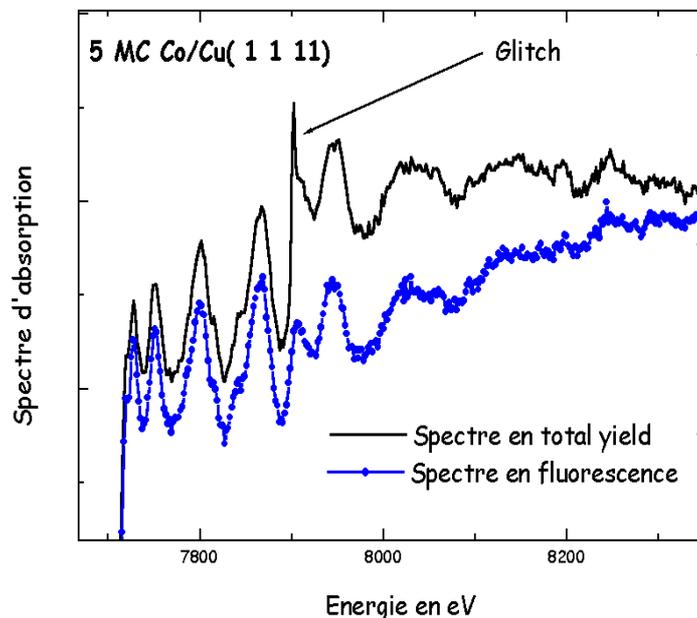


FIG. 4.8: Spectre EXAFS mesuré en fluorescence et en total yield sur un film de 5 MC Co/Cu (1 1 1). Sur le spectre en électrons le glitch situé à 7900 eV est plus marqué, ce qui permet de déceler sa présence en fluorescence.

mais est quelquefois moins performante que le *total electron yield* car l'angle solide de mesure est faible. De plus, l'électronique peut saturer si le nombre total de photons émis par l'échantillon est trop important.

Dans les deux types de mesure *total electron yield* et fluorescence, le spectre EXAFS est divisé par l'intensité du faisceau mesuré en sortie du monochromateur. Ceci permet de s'affranchir des instabilités du faisceau incident.

Pratiquement, lors de nos mesures, les deux modes de détection *total electron yield* et fluorescence sont utilisés. La plupart du temps, les spectres en électrons étaient difficilement exploitables. En effet, certains plans du substrat de cuivre sont, pour certaines énergies de photons incidents, en incidence de Bragg. Pour cette énergie particulière, une augmentation du nombre d'électrons créant des pics parasites dans l'absorption est observée. Ces pics sont communément appelés *glitches*. En détection de fluorescence, ils sont moins importants, car seul le cobalt contribue au signal et par conséquent l'amplitude des *glitches* est donc plus petite comparée à celle observée en détection d'électrons (figure 4.8). Cependant, il y a des cas pour lesquels on observe ces pics également en fluorescence. De manière pratique, la méthode pour détecter

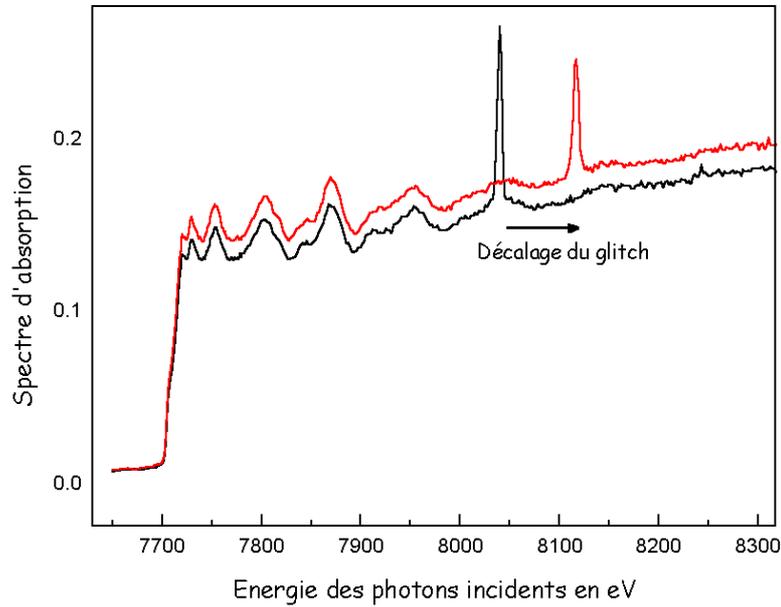


FIG. 4.9: Spectres EXAFS d'un film de 8 MC de Co/Cu(1 1 1) mesurés en fluorescence avec des angles d'incidence séparés de 2° . On note la présence d'un "glitch" qui se décale en fonction de l'angle d'incidence des photons.

les *glitches* consiste à modifier légèrement l'angle d'incidence des photons, les mêmes plans atomiques du substrat sont en position de Bragg pour des énergies de photons différentes. En se servant de ces deux passages sur lesquels les *glitches* sont décalés, on peut alors les détecter et les éliminer (figure 4.9).

4.3 Description de l'expérience Kerr

Comme nous l'avons vu brièvement dans le chapitre 2, l'effet Kerr résulte de l'interaction entre une onde électromagnétique polarisée linéairement et un milieu aimanté. L'onde alors réfléchie par ce milieu aimanté est polarisée elliptiquement comme le schématise la figure 4.10.

On définit deux angles permettant de caractériser la polarisation elliptique de l'onde réfléchie : la rotation Kerr notée θ_k et ε_k , l'ellipticité Kerr. Ces deux angles sont représentés sur la figure 4.10.

Plusieurs configurations de Kerr sont à distinguer :

- l'effet Kerr polaire,
- l'effet Kerr longitudinal
- et l'effet Kerr transverse.

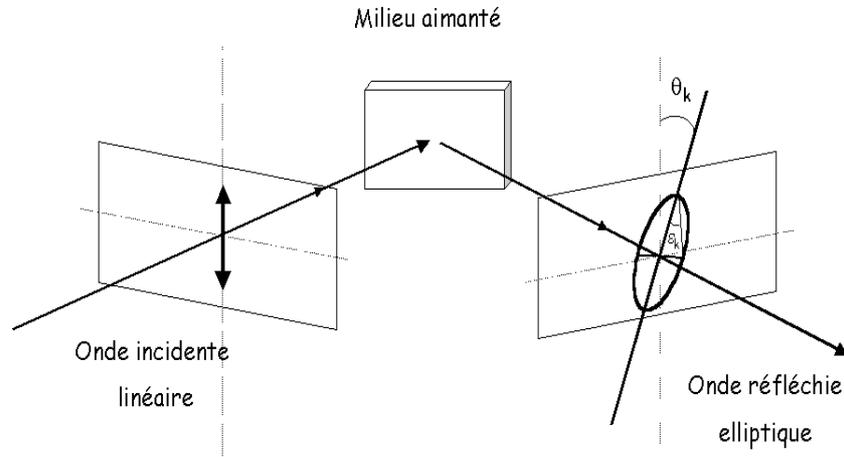


FIG. 4.10: Transformation par effet Kerr d'une onde incidente polarisée linéairement en onde elliptique après réflexion sur un milieu aimanté.

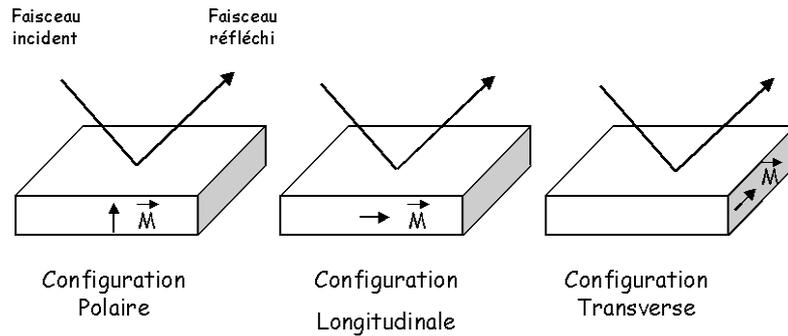


FIG. 4.11: Présentation des différentes configurations de l'effet Kerr.

Ces trois configurations sont exposées sur le schéma 4.11. Nous avons utilisé la configuration longitudinale lors de nos expériences, ayant vérifié qu'aucun signal en configuration polaire n'était obtenu dans notre cas.

De manière pratique, la mesure de l'effet Kerr consiste à mesurer la rotation θ_k et/ou l'ellipticité Kerr ε_k en fonction de l'intensité d'un champ extérieur appliqué dans une direction bien définie. Le champ maximal pouvant être appliqué est de 3,8 kOe avec un courant de 15 A par bobine. La pression de base de l'enceinte est de $2 \cdot 10^{-10}$ mbar.

Le dispositif expérimental est représenté sur le schéma 4.12. Par ordre de parcours, nous décrirons les différentes optiques et éléments rencontrés par le faisceau LASER [10].

La source lumineuse utilisée est une diode LASER de longueur d'onde égale à 670

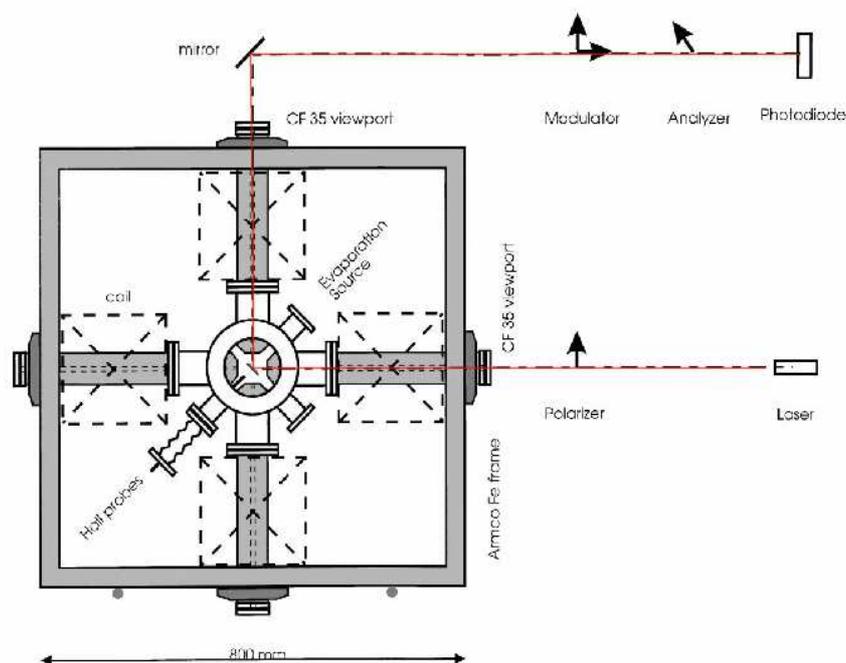


FIG. 4.12: Vue de dessus des quatre noyaux de fer entourés de bobines permettant le balayage en champ. L'échantillon se situe au centre de "la croix" formée par les 4 bobines. Le chemin optique de la diode LASER est indiqué en rouge. La configuration Kerr longitudinale est obtenue lorsque le champ appliqué est dans le plan de l'échantillon.

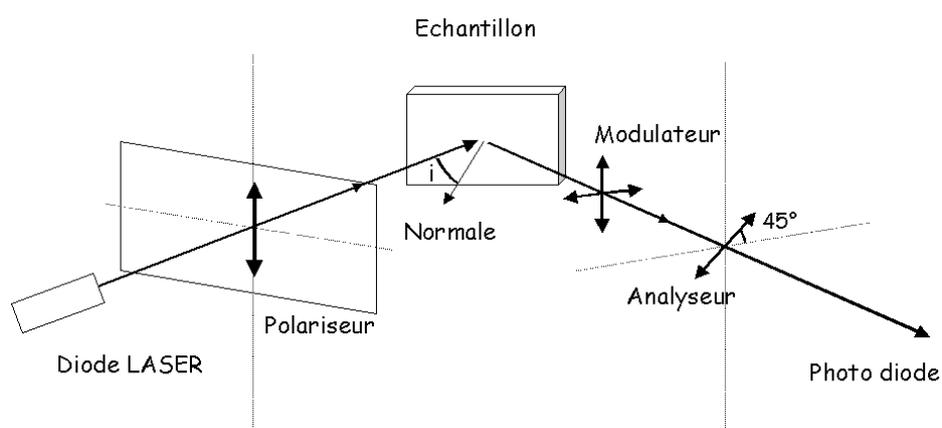


FIG. 4.13: Schéma du parcours du faisceau LASER avec orientation des deux polariseurs.

nm et de 1 mW de puissance. Ce type de source est polarisée linéairement.

Un premier polariseur permet d'obtenir une meilleure linéarité du LASER. Puis le faisceau pénètre dans l'enceinte ultravide par un hublot et arrive sur l'échantillon par un trou percé dans le noyau de fer. Il est ensuite réfléchi à 45° par l'échantillon et renvoyé à travers le noyau de fer vertical, également percé. Un miroir placé à sa sortie de l'enceinte le réfléchit vers le dispositif de détection. Ce dernier est constitué d'un modulateur photoélastique, d'un analyseur et d'une photodiode collectant l'intensité.

Le modulateur photoélastique module à fréquence fixe la polarisation d'une lumière monochromatique. Cette technique permet de filtrer le bruit du à la lumière ambiante de la pièce et permet de mesurer simultanément l'ellipticité et la rotation Kerr par la méthode de Sato [11][12].

L'analyseur est un polariseur identique à celui placé après la diode mais celui-ci est tourné de 45° (schéma 4.13).

Le détecteur en fin de ligne de détection est une photodiode avec un filtre ne laissant passer que la lumière rouge afin d'éliminer les perturbations provenant de la lumière ambiante.

Une caractéristique importante de cette expérience de mesure d'effet Kerr est que l'échantillon est placé sur un porte-échantillon possédant une rotation azimutale. Cette rotation permet d'appliquer le champ selon l'axe facile, selon l'axe difficile ou à un angle intermédiaire.

4.4 Description du microscope à effet tunnel

Depuis ces dix dernières années, la microscopie à effet tunnel, communément appelée par son acronyme anglais STM (Scanning Tunneling Microscope) a connu un grand développement. Cet engouement important pour cette technique vient sans aucun doute du fait qu'elle offre des *images* de surface dans l'espace direct. L'effet tunnel connu dès les années vingt avec la naissance de la mécanique quantique devient alors un outil puissant permettant d'étudier la morphologie des surfaces.

Dans ce chapitre, nous rappellerons en quoi consiste l'effet tunnel et de manière très succincte, les calculs de Tersoff et Haman qui le modélisent [4]. Pour des descriptions plus avancées des modèles théoriques usuels, je renvoie le lecteur aux thèses de Laurence Masson, Eric Le Goff et Salia Chérifi [5][6][7]. Puis, nous décrirons le microscope ainsi que le mode de fonctionnement utilisé. Le protocole de fabrication des pointes sera ensuite détaillé. Nous terminerons ce chapitre en citant les différents artefacts que nous avons rencontrés lors de l'acquisition des images sur Co/Cu(11n).

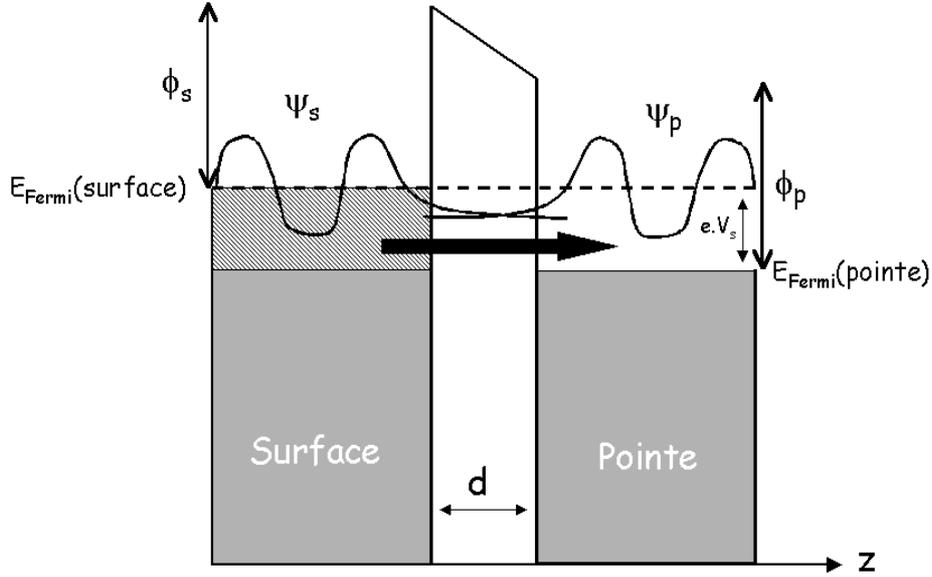


FIG. 4.14: Principe de l'effet tunnel avec Ψ_s et Ψ_p les fonctions d'onde électroniques respectivement de la surface et de la pointe. ϕ_s et ϕ_p sont les travaux de sortie de la surface et de la pointe. V_s est la différence de potentiel appliquée entre la pointe et la surface.

4.4.1 L'effet tunnel

L'effet tunnel découvert grâce à l'apparition de la mécanique quantique dès les années vingt, montre qu'il existe une probabilité non nulle qu'une particule décrite par une fonction d'onde traverse une barrière de potentiel séparant deux régions. Par exemple, si l'on rapproche deux métaux suffisamment près, les fonctions d'onde électroniques des états de surface des deux métaux se chevauchent. Ainsi la probabilité qu'un électron passe d'un métal vers l'autre est non nulle. Si une différence de potentiel V_s est appliquée entre les deux métaux, un courant d'électrons appelé courant tunnel peut alors être mesuré : des électrons passent d'un métal vers l'autre et franchissent la barrière de potentiel séparant dans notre cas la surface et la pointe de tungstène (figure 4.14).

D'après le modèle de Tersoff-Hamann [4] et dans le formalisme de Bardeen [3], le courant tunnel I_t se développe au premier ordre par :

$$I_t = \frac{2\pi e}{\hbar} \sum_{s,p} f(E_p) [1 - f(E_s + eV_s)] |M_{sp}|^2 \delta(E_p - E_s) \quad (4.3)$$

avec $f(E_p)$ la probabilité qu'un état de la pointe d'énergie E_p soit occupé et $1 - f(E_s + eV_s)$ correspond à la probabilité qu'un état de la surface de l'échantillon

d'énergie $E_s + eV_s$ soit vide. Les indices s et p sont respectivement attribués à la surface et à la pointe. M_{sp} est un élément de la matrice tunnel entre un état de surface et la pointe qui s'exprime par

$$M_{sp} = \frac{\hbar^2}{2m} \int \left(\Psi_s^* \vec{\nabla} \Psi_p - \Psi_p \vec{\nabla} \Psi_s^* \right) dA \quad (4.4)$$

avec m la masse de l'électron. L'intégrale est effectuée sur toute la surface A contenue dans la région séparant la pointe de la surface. Les fonctions d'onde $\Psi_p(z)$ et $\Psi_s(z)$ respectivement de la pointe et de la surface s'écrivent :

$$\Psi_p(z) = \Psi_p^0 \exp(-k(d-z)) \quad (4.5)$$

$$\Psi_s(z) = \Psi_s^0(\vec{r}) \exp(-kz) \quad (4.6)$$

avec d la distance pointe-surface et \vec{r} donnant la position d'un point de la surface (figure 4.14).

Finalement l'expression du courant tunnel I_t a la forme suivante :

$$I_t \propto \sum_{s,p} |\Psi_s^0(\vec{r})|^2 |\Psi_p^0| \exp(-2k.d) \quad (4.7)$$

De l'expression 4.7, on note que le courant tunnel dépend de manière exponentielle de la distance pointe-surface. Ceci permet d'utiliser la mesure du courant tunnel comme sonde de la topographie de la surface. Cependant, il faut exploiter ces résultats avec prudence car le courant tunnel dépend également de la structure électronique de la surface et de la pointe. Une pointe en tungstène est généralement utilisée, en effet, la densité d'états du tungstène est très plate autour du niveau de Fermi, ce qui permet de s'affranchir des effets de la structure électronique de la pointe sur les images obtenues. Le courant tunnel fournit donc des informations sur la topographie et la densité électronique de la surface qu'on ne peut découpler ce qui peut parfois poser des problèmes lors de l'interprétation des images.

4.4.2 Description du fonctionnement du microscope

Le microscope que nous avons utilisé, situé dans une enceinte ultra-vide est un microscope de marque OMICRON. La pression de base de cette chambre contenant le microscope est de 2.10^{-10} mbar. Les images STM ont été réalisées à température ambiante. Le STM est monté sur un système l'isolant des vibrations provenant de l'environnement. Lors des mesures STM, la pointe est à quelques angströms de la surface. L'approche pointe-échantillon est réalisée grâce à un moteur inertiel piézo-électrique faisant avancer l'échantillon. Cette approche est effectuée en contrôlant la

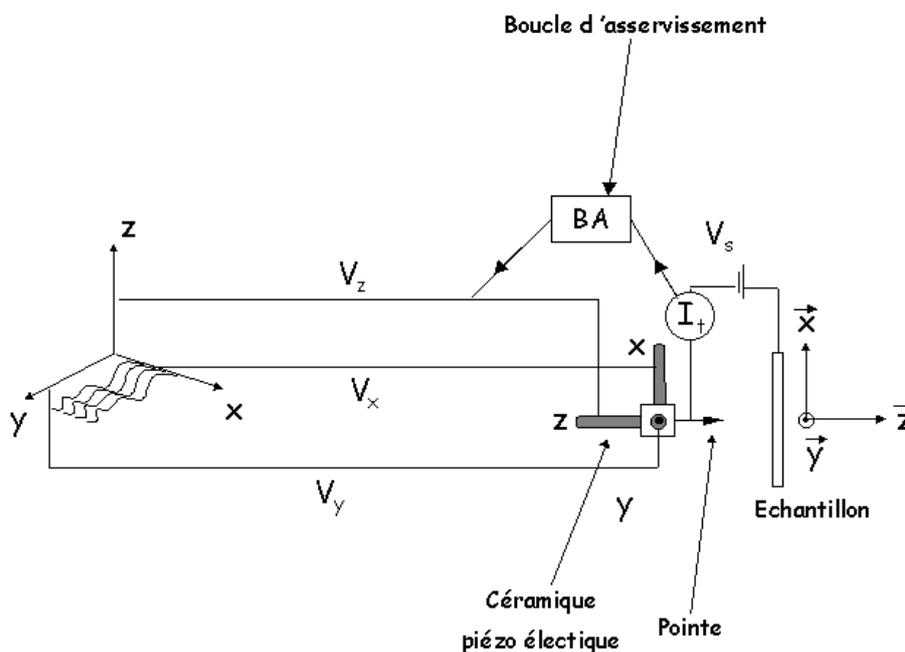


FIG. 4.15: Schéma de principe du fonctionnement du STM Omicron en mode courant constant.

valeur du courant tunnel afin d'éviter toute collision pointe-surface ce qui pourrait être particulièrement dommageable pour la pointe. Un autre moteur inertiel piézo-électrique permet de bouger l'échantillon selon l'axe x pour explorer différentes zones de l'échantillon (figure 4.15). Les images STM sont obtenues en balayant la pointe à la surface de l'échantillon. Entre chaque point constituant l'image, la pointe s'est déplacée de l'ordre de 0,1 nm. Ces nanomouvements sont réalisés grâce à des céramiques piézo-électriques. La pointe du STM est montée sur un trièdre de tubes en céramique piézo-électrique. Le balayage de la surface par la pointe est assuré par les céramiques notées X et Y sur la figure 4.15. Les tensions maximales V_x ou V_y appliquées sur les piézo-électriques offrent des images maximales de l'ordre de $2000 \text{ \AA} \times 2000 \text{ \AA}$. La troisième céramique notée Z permet un mouvement de la pointe selon la direction z .

Nous avons réalisé nos images STM selon le mode de fonctionnement appelé mode en courant constant (figure 4.16), le courant tunnel est maintenu constant lors du balayage grâce à une boucle d'asservissement. Si la pointe rencontre un obstacle, typiquement un bord de marche, elle ajustera sa position selon z pour conserver la même valeur du courant tunnel. Ainsi la distance pointe-échantillon est toujours la même, l'image STM est alors une carte des variations de la position z de la pointe (figure 4.16). Ce mode de fonctionnement avec une boucle d'asservissement imposant une

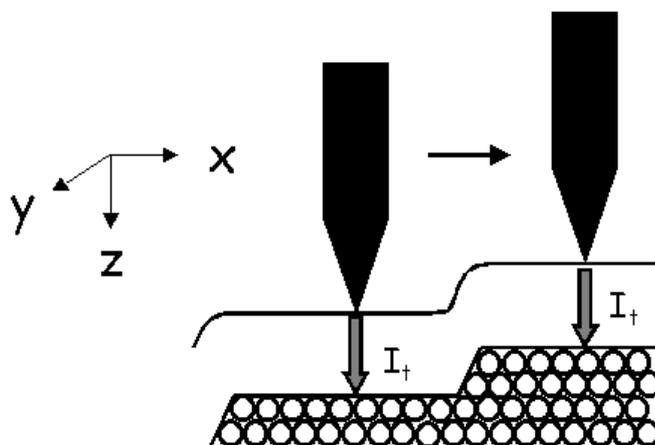


FIG. 4.16: Présentation du mode usuel de balayage en STM en mode courant constant. La hauteur de la pointe est ajustée par asservissement de façon à maintenir un courant tunnel constant.

distance pointe-échantillon constante évite les chocs entre la pointe et l'échantillon.

Les conditions de courant tunnel utilisées sont $I_t \approx 0,5nA$. La différence de potentiel appliquée entre la pointe et la surface est d'environ 1 V.

4.4.3 Protocole de fabrication des pointes

Il existe de nombreux protocoles de fabrication des pointes STM. Celui que nous avons utilisé consiste à sertir dans un porte-pointe une tige de tungstène et de la plonger dans une solution de soude (1 mol.L^{-1}). La tige subit alors une attaque électrochimique réalisée avec une tension alternative de 2V. Après avoir rincé avec de l'alcool la pointe, cette dernière est introduite dans l'enceinte ultra-vide. Elle y est alors bombardée par des ions argon avant d'être placée dans le microscope. Des pointes ayant été réalisées par le même protocole n'offrent pas automatiquement des résultats identiques. L'expérience est alors seule juge de la qualité de la pointe fabriquée. Lors de l'acquisition, cette qualité peut s'altérer, en effet, l'équilibre de la pointe est fragile car le courant tunnel passe par l'atome qui situé à l'extrémité de la pointe. Afin de régénérer la pointe une technique de balayage rapide ou bien une impulsion de tension peuvent être utilisées.

4.4.4 Artéfacts de mesure

Les électrons du courant tunnel sont émis au niveau des atomes situés à l'extrémité de la pointe. Dans le cas où la pointe est multiple, nous observons des images typiques de celle présentée sur la figure 4.17. Les flèches blanches indiquent la distance séparant

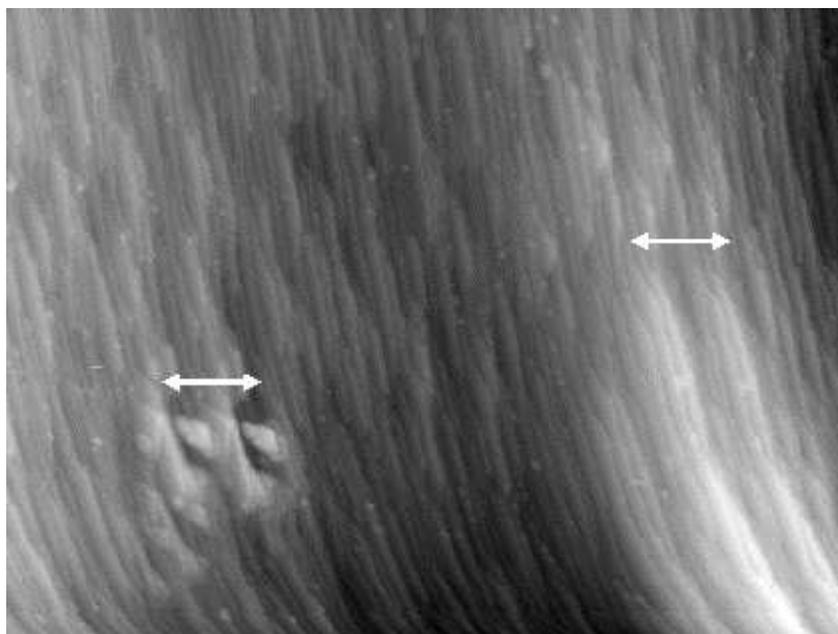


FIG. 4.17: Image STM $1724 \times 1216 \text{Å}^2$ obtenue sur une surface de 8MC de Co/Cu (1 1). L'effet de pointe double est surtout observé grâce aux défauts de la surface. On note que les défauts sont imagés deux fois. Les flèches blanches indiquent la distance séparant les deux pointes.

”les deux pointes”. L'effet de pointe double est surtout remarquable sur les défauts de la surface qui sont imagés deux fois (figure 4.18).

Les céramiques permettant le mouvement de balayage de la pointe sont sensibles aux variations de température et aux impulsions de tension ce qui peut provoquer une dérive de la position de la pointe. Ainsi après un chauffage de l'échantillon, il est important d'attendre que l'échantillon ait une température stable pour éviter ce type de dérive. Sur la figure 4.17, l'impression de marches courbes en bas de l'image est, dans ce cas précis, une dérive due à une impulsion de tension lors d'un changement de la taille de l'image. Si l'on attend le temps nécessaire à la stabilisation de la pointe, l'artefact des marches courbes disparaîtra.

Très souvent l'influence de la pointe sur la surface qu'elle image est discutée. En effet, la pointe de tungstène peut parfois modifier la surface. La figure 4.19 montre le changement de la surface après le passage de la pointe. En effet, l'image 4.19.a a été réalisée juste après une image $256 \times 256 \text{Å}^2$ au même endroit de l'échantillon dans le cadre blanc. Dans ce cadre, la surface a été balayée deux fois et on remarque qu'elle y présente plus de désordre (présence de boules) tandis que hors du cadre ces ”petites boules” sont en plus petite quantité. Ce phénomène n'a été observé qu'une seule fois.

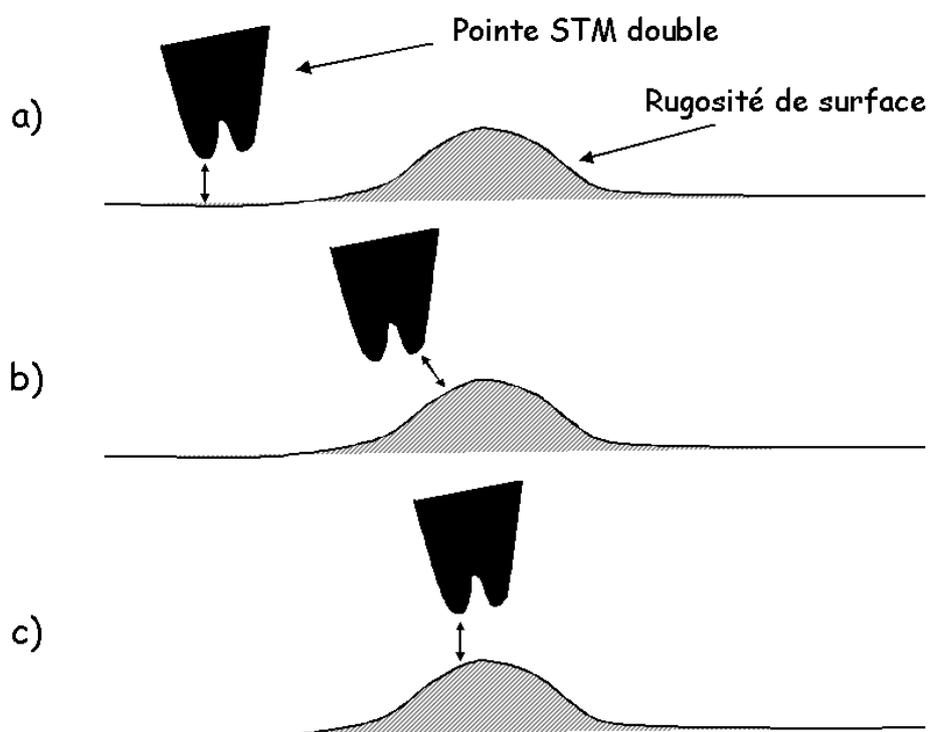


FIG. 4.18: Schéma explicatif soulignant l'effet produit par une pointe double. Les figures a), b) et c) représentant la pointe à différents instants.

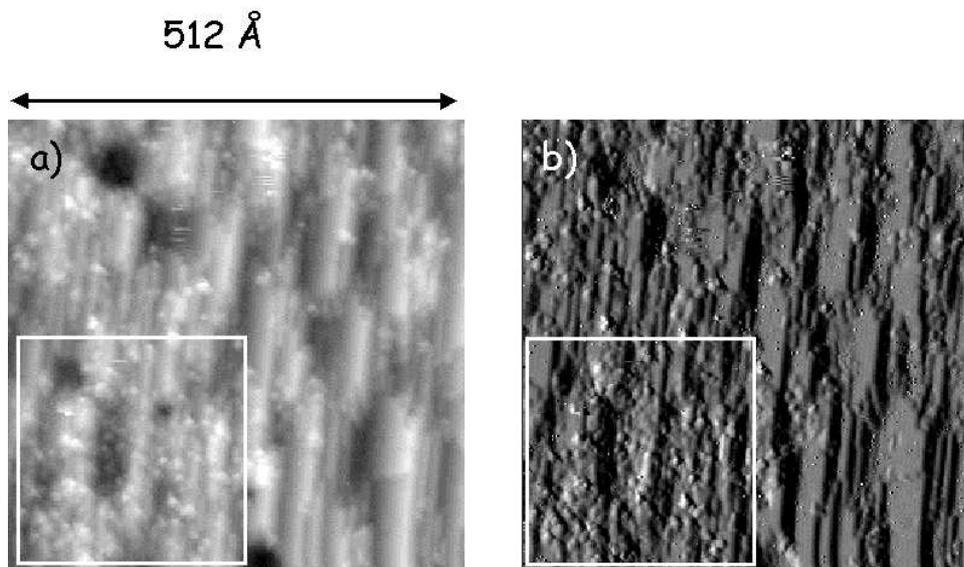


FIG. 4.19: Image STM a) et sa dérivée b) obtenue sur un dépôt de 4 MC de Co/Cu(115). Cette image $512 \times 512 \text{ \AA}^2$ succède une image $256 \times 256 \text{ \AA}^2$ réalisée au même endroit de l'échantillon dans le cadre blanc. On note que dans ce cadre la surface a été balayée deux fois et présente plus de désordre (présence de boules) tandis que hors du cadre ces "petites boules" sont en plus petite quantité. L'image b) en dérivée permet d'obtenir un meilleur contraste.

Pour éviter cet artefact, nous balayons à chaque fois une même zone plusieurs fois afin de vérifier que la pointe ne modifie pas la surface.

4.5 Préparation des échantillons

Les expériences de mesures magnétiques par effet Kerr, celles d'EXAFS de surface et celles de STM, ont été réalisées dans trois bâtis ultra-vide différents avec une pression de base typique de 2.10^{-10} mbar. Les échantillons ont été préparés de manière similaire dans les trois enceintes. Nous exposerons dans ce chapitre les différentes phases de préparation du substrat de cuivre ainsi que l'évaporation du cobalt. Nous détaillerons également les moyens permettant de contrôler la "propreté" de l'échantillon et la quantité de cobalt déposée.

4.5.1 Bombardement ionique et recuit du substrat

Les substrats de cuivre Cu(115) et Cu(1 1 11) ainsi que celui de Cu (001), ont été nettoyés par bombardement d'ions argon sous une pression de 8.10^{-5} mbar. Ce nettoyage ôte les premières couches atomiques en laissant la surface désorganisée. Un

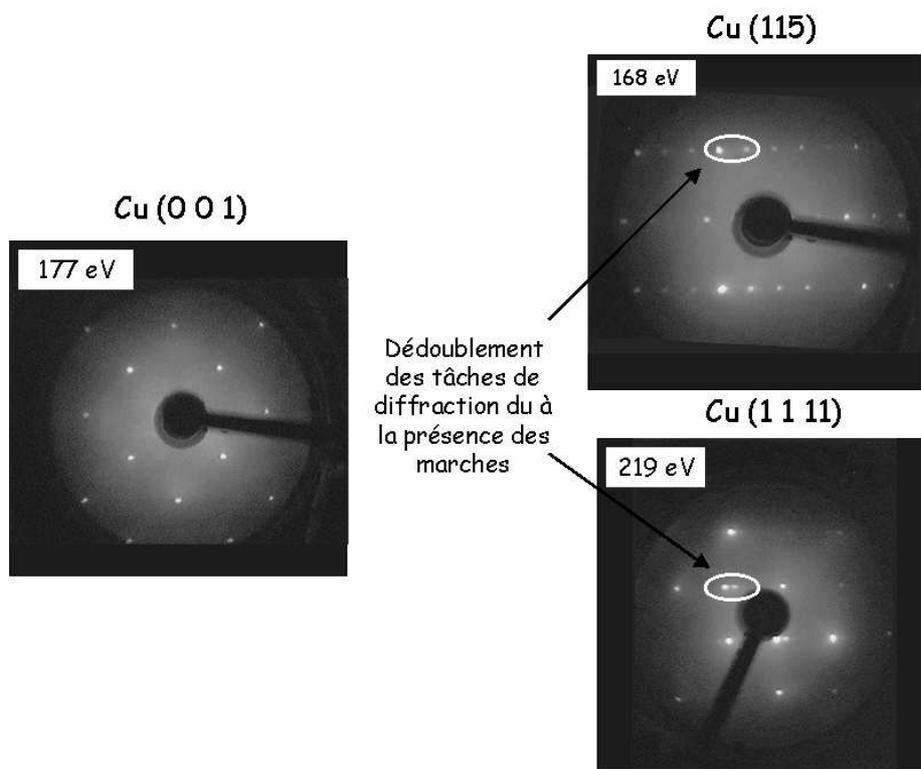


FIG. 4.20: Clichés de diffraction d'électrons lents obtenus pour trois substrats de cuivre : Cu(001), Cu (115) et Cu (1 1 1). En haut à gauche de chacun des clichés est indiquée l'énergie des électrons incidents. Un dédoublement des tâches de diffraction est observé sur les surfaces vicinales.

recuit est par conséquent nécessaire pour reconstruire cette surface. Le chauffage se fait par bombardement électronique : un filament, placé sous l'échantillon et polarisé négativement par une haute tension, émet des électrons qui sont accélérés vers l'échantillon électriquement à la masse ce qui permet de le chauffer. Nos conditions de recuit sont un chauffage à 850K pendant 15 minutes. Des clichés de diffraction d'électrons lents (DEL) permettent de contrôler l'efficacité d'un tel recuit et la bonne recristallisation du substrat. Quelques clichés sont exposés sur la figure 4.20. En comparant le cliché obtenu sur le cuivre plat avec ceux obtenus sur les substrats à marches, on note que les tâches dues au plan (001) sont dédoublées par la présence des marches. L'intervalle entre les deux parties d'une même tache éclatée est inversement proportionnel à la largeur des terrasses. L'explication détaillée de ce dédoublement est donnée dans le paragraphe 4.5.3.

La qualité de reconstruction des substrats a pu être également appréciée grâce aux images STM présentées sur la figure 4.21. Les deux substrats Cu (1 1 5) (fig 4.21.a) et

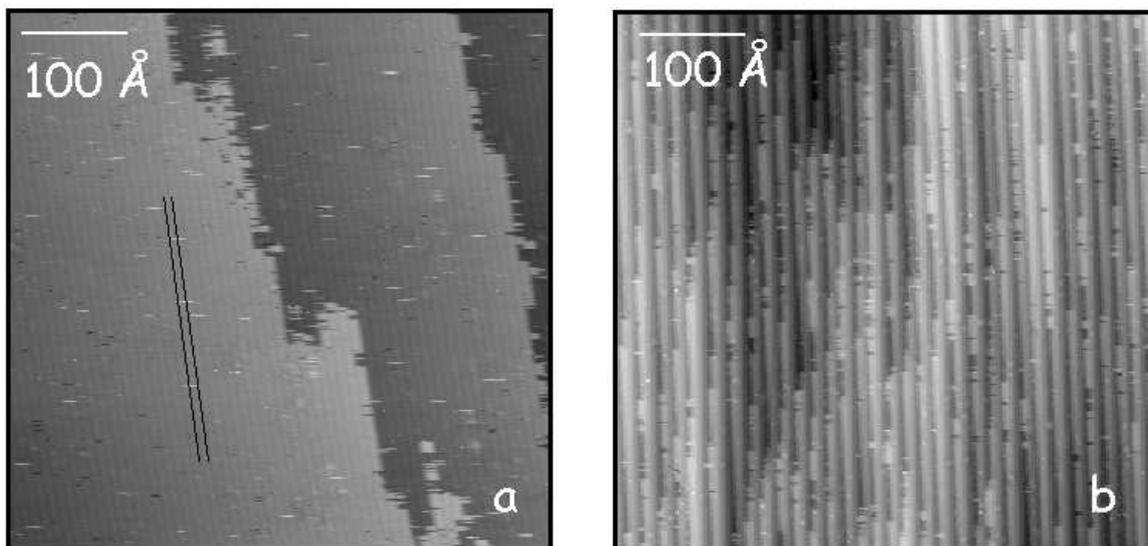


FIG. 4.21: Images STM (512×512)Å² des substrats de cuivre (115) (fig a) et de cuivre (1 1 1) (fig b). Les deux traits noirs sur la fig. a suivent deux bords de marches consécutifs.

Cu (1 1 1) (fig 4.21.b) présentent une surface avec un réseau de marches très régulier. Etant donné que la surface Cu(115) n'est pas une surface rugueuse à température ambiante, on observe trois domaines différents. Nous reviendrons sur ces différences entre les surfaces vicinales Cu (1 1 5) et Cu (1 1 1) dans le chapitre consacré à la morphologie des substrats et des films (chapitre 7).

Avant la première utilisation et afin d'éliminer les polluants (carbone, oxygène) et le soufre résiduel qui ségrége à la surface du cuivre, 6 à 8 cycles de bombardement-recuit ont été nécessaires initialement. Cependant, en ce qui concerne les surfaces vicinales, aucun bombardement ionique n'a été effectué à chaud pour ne pas détruire le réseau de marches.

Entre le bombardement et le recuit, un spectre Auger est souvent réalisé pour vérifier la propreté de la surface. Il est à noter que le nettoyage ainsi que le recuit ont été reproduits de manière similaire dans les trois chambres ultra-vide.

4.5.2 Evaporation de films minces de cobalt

Un évaporateur de type Omicron a été utilisé pour l'évaporation des films de cobalt. Un barreau de cobalt, polarisé positivement et placé à côté d'un filament à la masse, est chauffé par bombardement électronique ce qui permet l'évaporation du cobalt. Ce type d'évaporateur offre une bonne reproductibilité lorsque l'on se place à des conditions

de courant dans le filament et de tension appliquée sur le barreau identiques. De plus, il possède un flux moniteur permettant une évaluation du flux de cobalt sortant de l'évaporateur. Il permet également d'évaporer à des pressions très faibles typiquement de l'ordre de 3.10^{-10} mbar car son corps est refroidi par un circuit d'eau. Les dépôts ont été réalisés dans les trois bâtis à 300K et avec le même type d'évaporateur. La vitesse de dépôt typique est d'environ une monocouche par minute.

La calibration de l'épaisseur des films de cobalt a été contrôlée par trois types de mesures indépendantes :

- grâce à une calibration sur une balance à quartz,
- à l'aide de la spectroscopie Auger,
- et avec la mesure du saut de l'absorption au seuil K du cobalt dans le bâti de l'expérience d'EXAFS de surface.

Calibration avec une balance à quartz

L'une des premières calibrations est faite grâce à une balance à quartz. Cette dernière permet une calibration *a priori*. Cette estimation de la vitesse d'évaporation a été réalisée dans la chambre expérimentale d'EXAFS de surface au LURE. Cette balance est constituée d'un cristal de quartz piézoélectrique. La fréquence de vibration du cristal dépend de sa masse ainsi en étudiant la variation de cette fréquence lorsque on évapore sur sa surface, on en déduit la masse de cobalt déposé. La balance est placée dans une configuration spatiale quasi identique à celle de l'échantillon lors de l'évaporation. Il est à noter que le piézoélectrique de quartz est sensible aux variations de température qui peuvent entraîner des erreurs de calibration. L'évaporateur Omicron possède un cache en forme d'entonnoir à son extrémité ce qui d'une part permet d'évaporer uniquement sur l'échantillon mais aussi de protéger thermiquement la balance des dérives de température. Avec des conditions identiques de courant dans le filament et de haute tension appliquée sur le barreau, on montre que sur de nombreuses évaporations, la calibration obtenue sur la balance est la même.

Calibration avec les spectres Auger

La seconde technique de contrôle de la quantité de cobalt déposée est la spectroscopie Auger qui est une calibration *a posteriori*. On étudie les intensités relatives du pic Auger du cobalt situé à 716 eV et celui du cuivre situé à 920 eV.

Les électrons Auger parvenant sur le détecteur proviennent des premières couches de la surface ($\approx 10 \text{ \AA}$). Le nombre d'électrons Auger $I(E)$ détecté par l'analyseur décroît en fonction de la distance parcourue par ces électrons. Cette décroissance est de type :

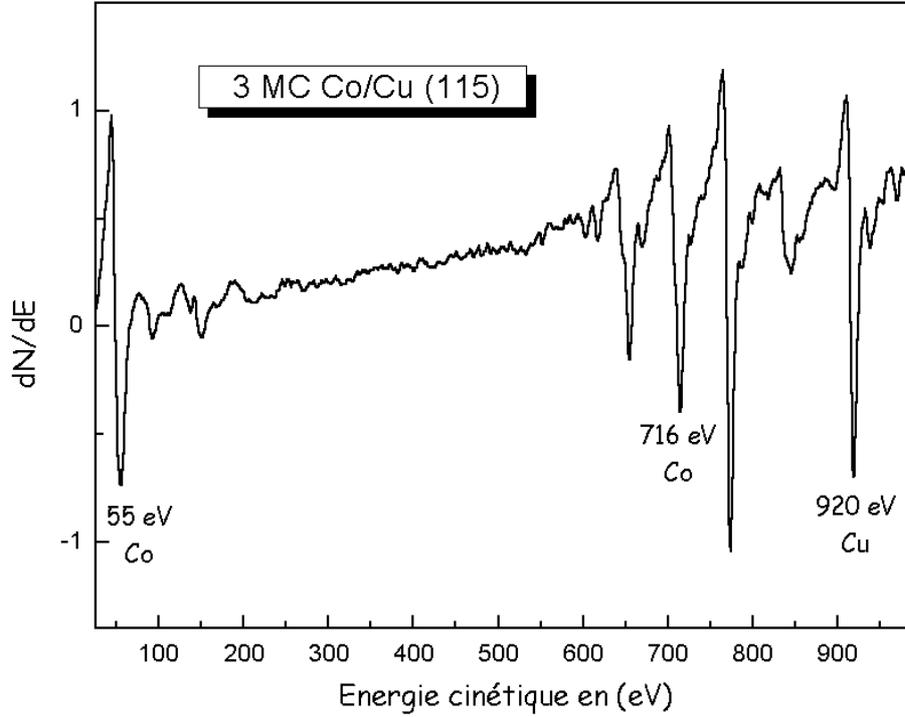


FIG. 4.22: Spectre Auger obtenu pour un film de 3 MC de cobalt déposé sur Cu(115).

$$I(E) = I^\infty(E) \exp\left(\frac{-x}{\lambda \cos(42^\circ, 18)}\right) \quad (4.8)$$

avec E l'énergie cinétique de l'électron, x l'épaisseur de matière traversée par l'électron et λ le libre parcours moyen de l'électron Auger. On note $\lambda_{ap} = \lambda \cos(42^\circ, 18)$, le libre parcours apparent tenant compte de l'angle de détection de $42,18^\circ$ de l'analyseur à miroirs cylindriques (CMA en anglais) du spectromètre Auger dont nous disposons.

$I^\infty(E)$ est l'intensité du pic considéré pour un film d'épaisseur infinie, elle est déterminée à partir de spectres de référence de l'élément étudié [8].

L'intensité du pic 716 eV du cobalt provenant des électrons Auger d'un film d'épaisseur d uniforme s'écrit :

$$I_{Co}(716 \text{ eV}) = \int_0^d I_{Co}^\infty(716 \text{ eV}) e^{\frac{-x}{\lambda_{ap}}} dx \quad (4.9)$$

$$I_{Co}(716 \text{ eV}) = \frac{I_{Co}^\infty(716 \text{ eV})}{\lambda_{ap}} \left(1 - e^{-\frac{d}{\lambda_{ap}}}\right) \quad (4.10)$$

Puisque le pic Auger du cobalt (716 eV) n'est pas trop éloigné de celui du cuivre (920 eV), le même libre parcours moyen apparent λ_{ap} est utilisé pour les deux pics. L'intensité Auger du pic situé à 920 eV du cuivre s'écrit :

$$I_{Cu}(920 \text{ eV}) = \int_d^{+\infty} I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV}) e^{-\frac{x-d}{\lambda_{ap}}} dx \quad (4.11)$$

$$I_{Cu}(920 \text{ eV}) = \frac{I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV})}{\lambda_{ap}} e^{-\frac{d}{\lambda_{ap}}} \quad (4.12)$$

Finalement, on obtient :

$$\frac{I_{Co}(716 \text{ eV})}{I_{Cu}(920 \text{ eV})} = \frac{I_{Co}^{\infty}(716 \text{ eV})}{I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV})} \left(\frac{1 - e^{-\frac{d}{\lambda_{ap}}}}{e^{-\frac{d}{\lambda_{ap}}}} \right) \quad (4.13)$$

Les intensités $I_{Co}(716 \text{ eV})$ et $I_{Cu}(920 \text{ eV})$ sont mesurées sur les spectres expérimentaux et d l'épaisseur de cobalt en Å s'écrit :

$$d = \lambda_{ap} \ln \left(\frac{I_{Co}(716 \text{ eV}) \times I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV})}{I_{Cu}(920 \text{ eV}) \times I_{Co}^{\infty}(716 \text{ eV})} + 1 \right) \quad (4.14)$$

Nous prendrons comme valeur du libre parcours moyen apparent 7 \AA et $\frac{I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV})}{I_{Co}^{\infty}(716 \text{ eV})} = 1,82$ d'après [8]. En utilisant ce modèle, on a supposé que le dépôt de cobalt sur la surface de cuivre est de type couche par couche.

Pour les faibles taux de couverture de cobalt inférieurs à 2 MC, certaines expériences (STM et EXAFS) montrent la présence d'îlots de 2 MC. Grâce à cette hypothèse, la spectrométrie Auger permet alors de remonter à la proportion de cuivre recouvert. Pour un modèle de croissance par bicouche schématisé sur la figure 4.23, on définit α la proportion de cuivre recouvert. d l'épaisseur du cobalt est égale à 2 MC. Déterminons α d'après les expressions 4.10 et 4.12 :

$$I_{Co}(716 \text{ eV}) = \alpha \frac{I_{Co}^{\infty}(716 \text{ eV})}{\lambda_{ap}} \left(1 - e^{-\frac{d_{2MC}}{\lambda_{ap}}} \right) \quad (4.15)$$

$$I_{Cu}(920 \text{ eV}) = (1 - \alpha) I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV}) + \alpha \frac{I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV})}{\lambda_{ap}} e^{-\frac{d_{2MC}}{\lambda_{ap}}} \quad (4.16)$$

Finalement :

$$\alpha = \frac{\lambda_{ap} R}{R^{\infty} + \lambda_{ap} R - e^{-\frac{d_{2MC}}{\lambda_{ap}}} (R^{\infty} + R)} \quad (4.17)$$

avec $R = \frac{I_{Co}(716 \text{ eV})}{I_{Cu}(920 \text{ eV})}$ et $R^{\infty} = \frac{I_{Co}^{\infty}(716 \text{ eV})}{I_{Cu}^{\infty}(920 \text{ eV})}$

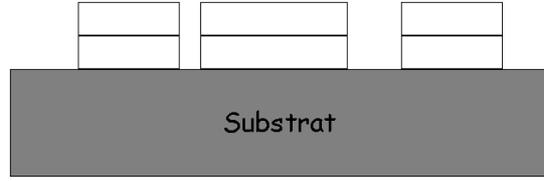


FIG. 4.23: Schéma représentant une croissance en bicouche.

Calibration avec le saut au seuil

La dernière des techniques pour calibrer *a posteriori* la quantité de cobalt déposée est la mesure du saut observé au seuil d'absorption K du cobalt mesuré en *total electron yield*. En effet, le saut au seuil d'un élément est proportionnel au nombre d'atomes de cet élément qui a été excité. D'après le paragraphe consacré aux modes de détection utilisé en EXAFS de surface, en mesurant le nombre d'électrons émis par l'échantillon, on obtient un signal qui est proportionnel à l'absorption de l'échantillon (paragraphe 4.2.1). On suppose que ces électrons proviennent d'une profondeur maximale de 50 couches atomiques ce qui représente environ 100 Å (la distance entre deux plans de cobalt ou de cuivre étant environ de 2 Å). Ainsi, on note I_{av} le nombre d'électrons émis par les atomes de cuivre et de cobalt avant seuil et I_{ap} celui émis juste après le seuil du cobalt. n est le nombre de monocouches de cobalt déposées, on a alors

$$I_{av} = (50 - n) I_{Cu}^{av} + n I_{Co}^{av} \quad (4.18)$$

$$I_{ap} = (50 - n) I_{Cu}^{ap} + n I_{Co}^{ap} \quad (4.19)$$

avec I_{Co}^{av} (I_{Cu}^{av}) le nombre d'électrons provenant des atomes de cobalt (cuivre) émis avant le passage du seuil K de Co et I_{Co}^{ap} (I_{Cu}^{ap}) le nombre d'électrons émis par les atomes de cobalt (cuivre) après seuil (figure 4.24). Le nombre d'électrons émis par le cuivre avant et après le seuil du cobalt reste constant ainsi $I_{Cu}^{av} = I_{Cu}^{ap} = I_{Cu}$.

On note $R = \frac{I_{ap}}{I_{av}}$ que l'on détermine expérimentalement sur le spectre EXAFS mesuré en électrons et n s'exprime alors par :

$$n = \frac{50(R - 1) I_{Cu}}{(R - 1) I_{Cu} - R I_{Co}^{av} + I_{Co}^{ap}} \quad (4.20)$$

Le nombre d'électrons émis par un type d'atome à une énergie donnée est proportionnel à la section efficace d'absorption. Les valeurs des sections efficaces d'absorption σ établies dans les tables autour du seuil K du cobalt (7709eV) sont σ_{Co}^{av} (7700 eV) = 4585 Barns/atome, σ_{Co}^{ap} (7710 eV) = 36948,3 Barns/atome et $\sigma_{Cu} = \sigma_{Cu}^{av}$ (7700) =

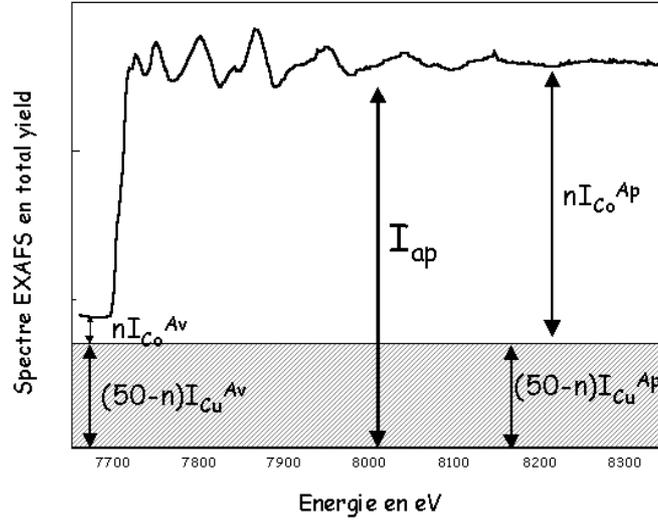


FIG. 4.24: Spectre EXAFS de 8 MC Co/Cu(115) mesuré en total yield.

$\sigma_{Cu}^{ap}(7710) = 6113,68$ Barns/atome [9]. Finalement en prenant ces valeurs, n le nombre de couche de cobalt s'écrit :

$$n = \frac{50(R - 1)}{0,25R + 5,043} \quad (4.21)$$

Il est à noter que la calibration obtenue grâce au saut au seuil mesure une quantité de cobalt dans une épaisseur d'environ 100 Å, elle n'est donc pas sensible au mode de croissance (couche par couche, bicouche, îlots...) ou à l'interdiffusion contrairement à la spectrométrie Auger.

Ces trois méthodes de mesure de la quantité de cobalt déposée sont indépendantes. En pratique, elles se recourent bien et permettent une estimation de la quantité de cobalt déposé avec une précision de $\pm 10\%$.

4.5.3 Orientation des échantillons

L'orientation des substrats de cuivre a été réalisée grâce des clichés Laue et confirmée par diffraction d'électron lents (DEL). Nous allons dans ce paragraphe montrer le protocole que nous avons suivi pour déterminer l'orientation des marches grâce aux images DEL. Nous prendrons comme exemple la surface (115), toutes les remarques et les observations qui suivent sont parfaitement transposables à n'importe quel type de surface

(11n).

Le DEL est une technique de diffraction de surface à l'échelle atomique. Elle est sensible à l'ordre sur une longueur de corrélation typique d'une centaine d'Angströms. La maille élémentaire de notre échantillon est constituée d'une terrasse (001) de largeur L_o . Le réseau réciproque d'une surface infinie (001) est formée de tiges de diffraction et est représenté sur la figure 4.25.

Sur la figure 4.25, les points sont les taches de diffraction du volume de l'échantillon. Si maintenant, nous considérons une terrasse (001) de largeur finie L_o , les tiges de diffraction sont élargies ($\sim \frac{2\pi}{L_o}$) (figure 4.25). La surface (11n) donne des tiges de diffraction inclinées par rapport à celles de la surface (001). L'intensité le long de la tige de diffraction est modulée du fait de la largeur finie des terrasses (001). L'intensité de la tige est maximale au niveau des taches de diffraction de volume et minimale entre deux taches consécutives. Un schéma du réseau réciproque simplifié de la surface (11n) dans la théorie cinématique est représenté sur la figure 4.26. Les droites grises représentent les tiges de diffraction de surface (11n), les points noirs sont les pics de diffraction du volume. Pour simplifier le schéma, nous avons représenté par des bâtons noirs et non par des ellipsoïdes la partie de la tige où l'intensité est maximale.

Les différents cercles sur la figure 4.26 sont une section de la sphère d'Ewald, le rayon de la sphère est inversement proportionnel à la longueur d'onde des électrons incidents, ainsi plus ce rayon est important plus l'énergie des électrons est grande. L'image DEL que nous observons est l'intersection des tiges non éteintes avec la sphère d'Ewald. Plaçons nous dans le cas de la sphère d'Ewald A (schéma 4.26), c'est à dire à une énergie d'électrons pour laquelle la tâche 1 a son intensité maximale et la tâche 2 quand à elle est de faible intensité. En augmentant l'énergie des électrons, (sphère B), la tâche 1 disparaît et la tâche 2 apparaît. Sur le cliché DEL, on a alors l'impression que les taches sont décalées vers la gauche quand l'énergie augmente. Ceci indique donc que les marches montent vers la gauche. Si au contraire, les taches de diffraction partaient vers la gauche en augmentant l'énergie des électrons, l'orientation des marches serait inversée. Sur les diagrammes DEL, il est à noter que les taches sont d'autant plus resserrées que le substrat a de marches (figure 4.26). La détermination du sens de montée des marches est moins aisée sur Cu(115) que dans le cas de plus larges terrasses comme Cu(1 1 11) où de plus les extinctions sont plus marquées.

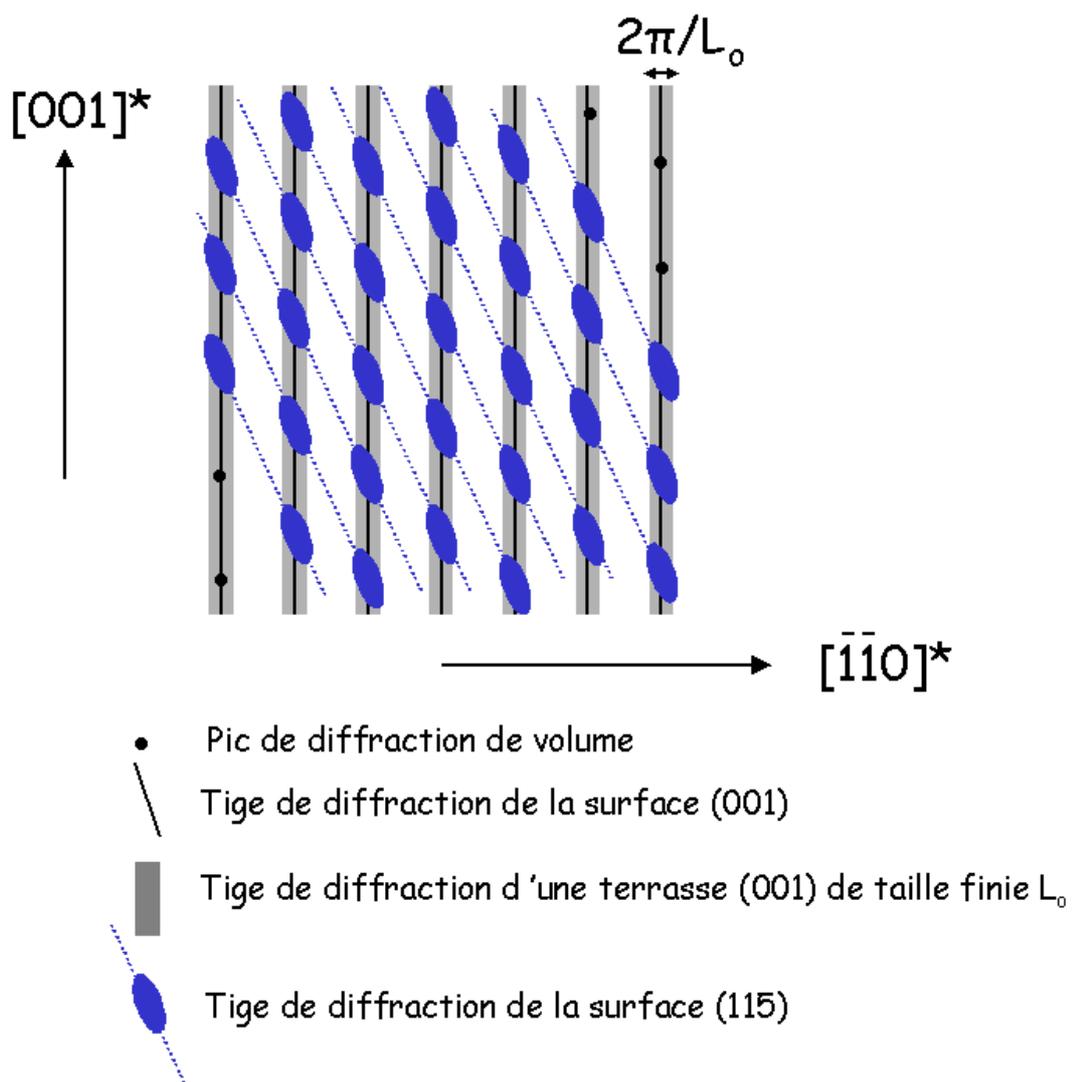


FIG. 4.25: Schéma représentant les tiges de diffraction sur une surface (115).

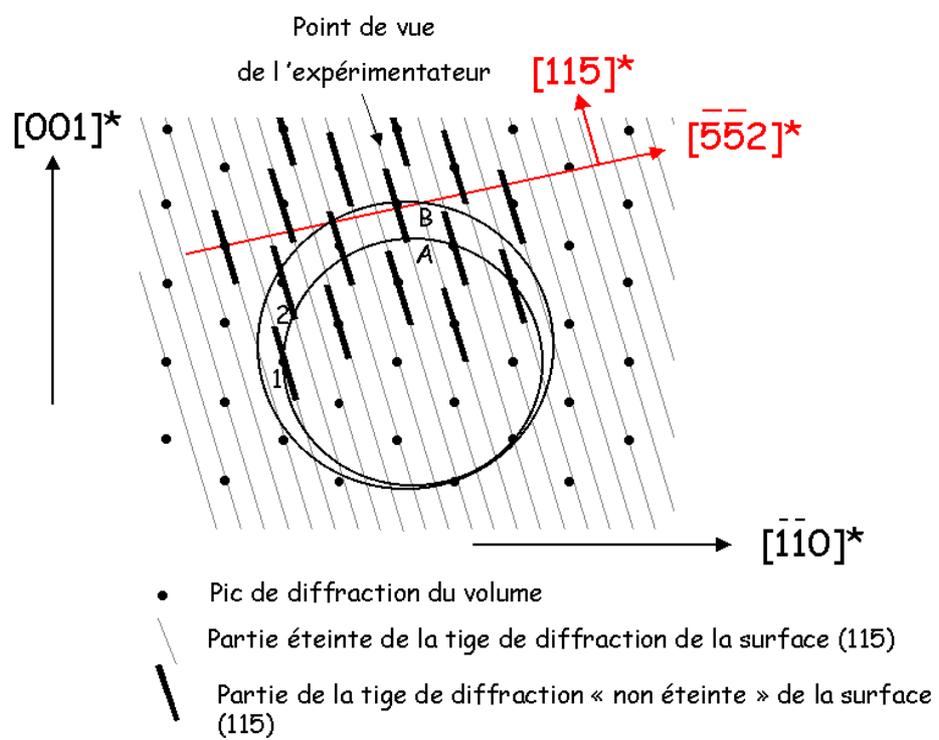


FIG. 4.26: Schéma représentant les tiges de diffraction sur une surface Cu(115).

Bibliographie

- [1] Patrick Le Fèvre, thèse de doctorat de l'université Paris XI (1995).
- [2] J. Stöhr, C. Noguera et T. Kendelewicz, Phys. Rev. B **30**, 5571 (1984).
- [3] J. Bardeen, Phys. Rev. Lett. **6**, 57 (1961).
- [4] J. Tersoff et D. R. Hamann, Phys. Rev. Lett. **50**, 1998 (1983).
- [5] Laurence Masson, thèse de doctorat de l'université Paris XI (1994).
- [6] Eric Le Goff, thèse de doctorat de l'université Paris VI (1999).
- [7] Salia Chérifi, thèse de doctorat de l'université Louis Pasteur Strasbourg I (2001).
- [8] "Handbook of Auger electron spectroscopy" Third edition Physical Electronics.
- [9] Site web de la table de W. H. McMaster et al. : <http://www.csrr.iit.edu/periodic-table.html>
- [10] S. Boukari, J. Balay, E. Beaurepaire, G. Biechel, B. Carrière, J. P. Deville, B. Muller et F. Scheurer Vacuum, **52**, 327 (1999).
- [11] Guillaume Garreau, thèse de l'université Louis Pasteur Strasbourg (1997).
- [12] Sato K. Jap. J. Appl. Phys. **20**, 2403 (1981).

Chapitre 5

Études précédentes sur les films de Co/Cu(001) et Co/Cu(11n)

5.1 Introduction

De nombreuses études ont montré que le dépôt de films minces de métaux magnétiques sur des substrats monocristallins pouvaient stabiliser des structures cristallographiques différentes de celles observées dans les matériaux solides magnétiques. Ceci peut conférer par conséquent aux films minces des propriétés différentes de celles des matériaux massifs. En effet, dans de tels films, l'anisotropie magnétique peut être de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des matériaux massifs. Depuis la découverte de l'anisotropie magnétique perpendiculaire à la surface des films ferromagnétiques [1][2][3][4], le rôle joué par la rupture de symétrie à la surface et par les contraintes engendrées par le désaccord de paramètre de maille entre le substrat et l'adsorbat ont été très étudiées. Dans le cadre de ces études, des expériences ont été réalisées sur des films magnétiques déposés sur des surfaces vicinales ou des surfaces à marches non régulières [5][6][7][8][9][10][11][12]. Ces mesures de propriétés magnétiques ont montré la présence d'une anisotropie magnétique uniaxiale favorisant la direction de facile aimantation soit parallèle soit perpendiculaire aux bords de marches. Pour les films de cobalt déposés sur des substrats de cuivre Cu (11n), la direction de facile aimantation est le long des bords de marches $[1\bar{1}0]$ tandis que pour les dépôts effectués sur des surfaces plates de cuivre (001), l'anisotropie magnétique est biaxiale selon $[1\bar{1}0]$ et $[110]$. L'anisotropie uniaxiale des films de Co/Cu(11n) est alors typiquement liée à la présence des marches. Si les origines de cette anisotropie ont été souvent attribuées aux liaisons manquantes aux bords de marches (anisotropie de surface type Néel) ou/et aux contraintes du film (anisotropie magnétoélastique) peu de mesures de morphologie et de structure des films ont été réalisées pour mettre en évidence ces deux hypothèses.

	K_4^V (erg.cm ⁻³)	K_4^{SI} (erg.cm ⁻²)	K_{out}^V (erg.cm ⁻³)	K_{out}^{SI} (erg.cm ⁻²)
Co/Cu(001) Krams et al. [13]	-2, 3.10 ⁶	0, 068		-0, 90
Cu/Co/Cu(001) Krams et al. [13]	-2, 2.10 ⁶	0, 062		0, 30
Co/Cu(001) Kowaleswski[14]	-1.10 ⁶	0, 007	-10, 8.10 ⁶	-0, 26

TAB. 5.1: Récapitulatif des mesures de constantes d'anisotropie magnétique effectuées par Krams et al. et Kowaleswski et al. sur des films minces de Co/Cu(001).

Nous allons dans un premier temps exposer les études précédemment réalisées sur des films minces de cobalt déposés sur des substrats plats de cuivre (001). Ces premiers résultats regroupent des mesures de magnétisme, de structure et de morphologie. Puis dans un second temps, un récapitulatif exposera les résultats obtenus dans la littérature principalement sur le magnétisme des films de cobalt déposés sur des surfaces vicinales Cu(11n).

5.2 Récapitulatif bibliographique sur Co/Cu(001)

5.2.1 Propriétés magnétiques

Les principaux résultats de magnétisme obtenus sur des films minces de cobalt déposés sur une surface plane de cuivre (001) ont été mesurés grâce à la diffusion Brillouin [13] et grâce à la technique de résonance ferromagnétique [14]. Ces mesures permettant de déterminer les constantes d'anisotropie magnétiques dans le plan du film K_4 (anisotropie biaxiale) et celle hors du plan K_{out} (anisotropie uniaxiale). Les valeurs des constantes d'anisotropie sont regroupées dans le tableau 5.1. Dans ces études, les constantes d'anisotropie sont décrites avec une contribution de volume K_i^V et une contribution de surface-interface K_i^{SI} qui s'écrivent :

$$K_i = K_i^V + \frac{1}{d}K_i^{SI} \quad (5.1)$$

avec $i = out$ ou 4 et d l'épaisseur du film. En étudiant la variation de K_{out} et K_4 en fonction de l'épaisseur du film, les contributions de surface-interface et de volume peuvent être déterminées si ces dernières sont constantes avec l'épaisseur.

La valeur négative de K_4 montre que ces films présentent deux axes de facile aimantation dans le plan de la surface selon les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ et que l'axe $[001]$ est quant à lui difficile car $K_{out} < 0$. On note que les résultats de Krams et al. [13] et de Kowaleswski et al. [14] sont légèrement différents mais restent relativement

dans le même ordre de grandeur. Des expériences ont également été réalisées sur des films minces recouverts de 2 MC de cuivre. Ces mesures exposées dans la référence [13] montrent que la présence de deux monocouches de cuivre ne change pas la valeur de K_4 tandis que celle de K_{out}^{SI} varie. De cette observation sur les films de cobalt non recouverts et ceux recouverts de cuivre, il est alors possible d'extraire la contribution surfacique de K_{out} liée à l'interface Co/Cu et à la surface Co/vide : $K_{out}^I (Co/Cu) = 0,15 \text{ erg.cm}^{-2}$ et $K_{out}^S (Co/vide) = -1,2 \text{ erg.cm}^{-2}$ ($K^{SI} = K^S + K^I$). On en déduit que l'interface Co/vide favorise l'orientation de l'aimantation dans le plan tandis que l'interface Co/Cu contribue à rendre facile la normale à la surface. Expérimentalement, l'aimantation reste tout de même dans le plan, car le terme dipolaire et le terme biaxial K_4 tendent à ramener l'aimantation dans le plan.

5.2.2 Structure et morphologie

Le cobalt massif a une structure hexagonale compacte avec comme paramètre de maille $a = 2,51\text{Å}$ et $c = 4,07\text{Å}$ tandis que le cuivre est dans une structure cubique à faces centrées (cfc) avec un paramètre de $3,61\text{Å}$. Un tel substrat stabilise la structure cubique à faces centrées du cobalt qui n'existe pas à température ambiante. Si on suppose que le cobalt cfc à la même distance premiers voisins que dans la structure stable hexagonale compacte ($R = 2,505 \text{ Å}$). Le paramètre de maille du cobalt serait $a = 3,54\text{Å}$. Ainsi un désaccord de maille de l'ordre de 2% existe donc entre le substrat et l'adsorbat. Les résultats d'EXAFS de surface [15] confirment les premiers résultats de diffraction d'électrons [16][17][18] et de diffusion atomique thermique (Thermal-energy atomic scattering) [17]. Ces différentes techniques indiquent que le cobalt est en épitaxie cohérente sur le cuivre. Le grand avantage de l'EXAFS de surface est d'avoir la même précision sur les distances premiers voisins autour du cobalt dans le plan de la surface que sur les distances hors-plan. Le cobalt étire son paramètre de maille dans le plan et les mesures d'EXAFS [15] [20] montrent que la distance premier voisins autour des atomes de cobalt dans le plan (001) est égale à $2,55 \pm 0,01\text{Å}$ c'est à dire celle du cuivre. Par contre, la longueur des liaisons premiers voisins hors-plan est égale à $2,50 \pm 0,01\text{Å}$. O. Heckmann et al. [15] ont montré que le cobalt avait cette structure tétragonale à faces centrées pour des dépôts de 2 MC à 15 MC et que les films étaient d'une bonne qualité cristallographique i.e. très peu désordonnés. Le cobalt est par conséquent contraint par le cuivre dans le plan (001) et la contraction du paramètre de maille perpendiculaire à la surface peut s'expliquer dans le cadre de la théorie d'élasticité des milieux continus [20].

Si la structure tétragonale du cobalt est bien définie, il n'en va pas de même pour le mode de croissance des films qui a été le sujet de nombreuses publications. Pour les

dépôts supérieurs à 2 MC, toutes les expériences offrent des résultats concordant et montrent que la croissance du cobalt sur Cu(001) s'effectue couche par couche (croissance de type Frank Van der Merwe que l'on notera par la suite FM). La controverse porte surtout sur les premiers stades de croissance et notamment pour les dépôts inférieurs à 2 MC. De manière générale, les expériences réalisées grâce à la spectroscopie Auger en suivant l'amplitude des pics du cobalt et du cuivre pendant la croissance concluent à une croissance de type couche par couche dès le début de la croissance [16][18]. Ces mesures sont souvent couplées avec le suivi au cours du dépôt des oscillations de l'intensité d'un pic de LEED (Diffraction d'électrons lents) ou MEED (Diffraction d'électrons de moyenne énergie) ou RHEED (Reflection high energy electron diffraction) [16][18][17][21] qui indique également une croissance FM. L'utilisation de la microscopie à effet tunnel (STM) confirme le mode FM pour les dépôt supérieurs à 2 MC, mais montre une légère déviation de ce mode de croissance pour les dépôts inférieurs à 2 MC pour lesquels on note l'apparition d'îlots de 2MC de haut [22][23]. D'après l'analyse des images STM de Ramsperger et al. [22], 10% des atomes de cobalt sont sur la seconde couche pour un dépôt de 0,9 MC. Des expériences de diffusion de rayons X photoémissive résolue en angle (Angle Resolved X ray Photoemission Scattering) et de diffusion de rayons X en incidence rasante confirment cet écart pour les faibles épaisseurs et montrent une croissance bien ordonnée couche par couche pour des dépôts supérieurs à 2 MC [24] [25]. On peut ainsi conclure que cet écart au mode couche par couche est trop faible pour être détecté par la spectroscopie Auger.

En ce qui concerne les tous premiers stades de croissance étudiés par STM, Fassbender et al. [26], Nouvertné et al. [27], mettent en évidence l'inclusion d'atomes de cobalt dans la première couche de cuivre. Ces inclusions se font grâce à un échange atomique entre les atomes déposés et les atomes du substrat. Bien que le cobalt soit immiscible dans le cuivre, le moteur de cet échange est probablement lié à l'énergie de surface du cobalt qui est supérieure à celle du cuivre ($\gamma_{Co} = 2550 \text{ mJ.m}^{-2}$ et $\gamma_{Cu} = 1850 \text{ mJ.m}^{-2}$ [26]). Fassbender et al. estiment qu'un quart de la première couche est constituée de cuivre et que la seconde n'en comporte plus que 5% [26]. Nouvertné et al. mettent également en évidence cet échange Co/Cu pour les premiers stades de croissance [27]. Ces derniers confirment grâce à des calculs théoriques de fonctionnelle densité le rôle de ces atomes de cobalt enterrés dans la première couche du substrat qui agissent comme des sites préférentiels de nucléation des îlots de cobalt [27].

Ainsi, on peut alors conclure que le léger écart à la croissance de type couche par couche rencontré pour les dépôts de cobalt en dessous de 2 MC est sans doute lié à l'échange Co/Cu qui gêne la croissance FM dès les premiers stades de croissance. Puis pour des épaisseurs supérieures à deux monocouches, l'échange entre le cobalt et le cuivre disparaît et un mode de croissance couche par couche s'établit.

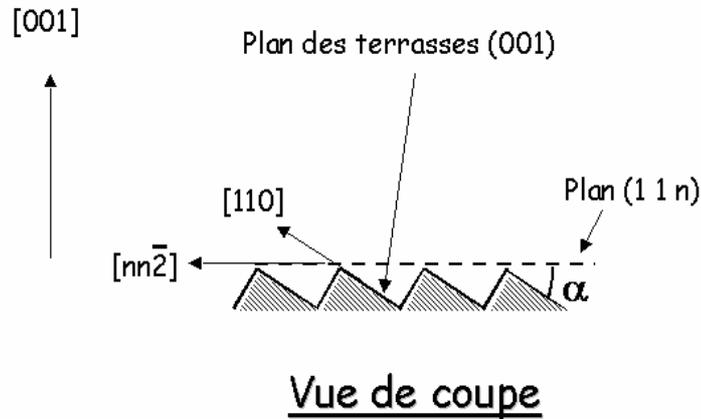


FIG. 5.1: Schéma représentant une surface vicinale.

5.3 Récapitulatif bibliographique sur Co/Cu(11n)

5.3.1 Propriétés magnétiques

La littérature offre de nombreux exemples de mesures de propriétés magnétiques effectuées sur des dépôts de cobalt réalisés sur des surfaces vicinales de cuivre (11n). Toutes ces expériences montrent que ces films présentent un axe unique de facile aimantation qui est selon la direction $[1\bar{1}0]$ qui correspond à la direction des bords de marches [28][29][30][31][34][35][37]. Les films présentent encore la même anisotropie d'ordre 4 dans le plan que celle observée sur les films Co/Cu(001) (axes faciles $[110]$ et $[1\bar{1}0]$). L'axe $[110]$ est alors un axe difficile "intermédiaire" : il combine un caractère facile provenant de l'anisotropie de symétrie 4 avec un caractère difficile venant de l'anisotropie uniaxiale. Par la suite et par abus de langage, on parlera d'axe difficile. Il est à noter que dans ces études, les substrats de cuivre ont un faible angle de coupe α par rapport au plan (001) et de larges terrasses ($>$ à 20 Å). La direction $[110]$ est alors assimilée à la direction $[nn\bar{2}]$ et elle est prise comme axe difficile (schéma 5.1).

Dans le modèle phénoménologique Stoner-Wohlfarth exposé dans le paragraphe 2.2, deux constantes d'anisotropie magnétique sont définies dans le plan de la surface : K_4 est la constante de facile aimantation biaxiale et K_u est celle uniaxiale. Ces deux constantes sont déterminées, dans le cas des mesures magnéto-optiques par effet Kerr, lorsqu'on applique un champ extérieur le long de l'axe difficile i.e. pour Co/Cu(11n) dans le plan de la surface perpendiculairement aux bords de marches. Un cycle typique selon l'axe difficile réalisé sur Co/Cu(1 1 17) par Wulfhekel et al. est présenté sur le schéma 5.2 [28].

Dans la référence [33], Wulfhekel et al. présentent une mesure de la pente à l'ori-

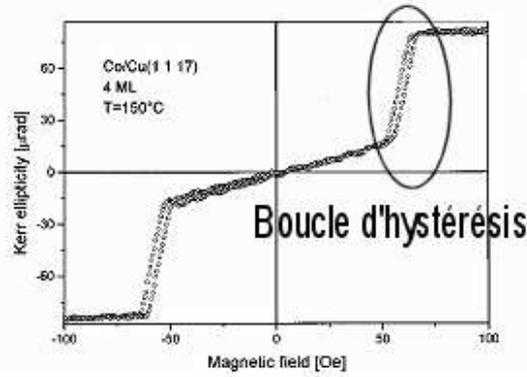


FIG. 5.2: Cycle Kerr obtenu selon l'axe difficile sur un film de 4 MC de Co déposé sur Cu(1 1 17) par Wulfhekel et al.

Echantillon	$(K_u - K_4)_V$ erg.cm ⁻³	$(K_u - K_4)_{SI}$ erg.cm ⁻²
Co/Cu(1 1 17) Wulfhekel et al. [33]	$7,9 \cdot 10^5$	$3,0 \cdot 10^{-2}$
Cu/Co/Cu(1 1 13) Krams et al. [34]	$12,5 \cdot 10^5$	$-4,2 \cdot 10^{-2}$

TAB. 5.2: Tableau récapitulatif les contributions de volume et de surface de $(K_u - K_4)$ du cobalt sur différentes surfaces de cuivre Cu(11n).

gine sur les cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile en fonction de l'épaisseur de cobalt sur Cu(1 1 17) (figure 5.2). La pente à l'origine est proportionnelle à $(K_u - K_4)$ (chapitre 2.2, équation 2.11). D'après l'équation 5.1, il est alors possible de séparer les contributions de volume $(K_u - K_4)_V$ et de surface-interface $(K_u - K_4)_{SI}$ en étudiant la variation de $(K_u - K_4) \times d$ en fonction de l'épaisseur du dépôt d . Nous comparerons ces résultats avec ceux de Krams et al sur Co/Cu(1 1 13) obtenus par diffusion Brillouin [34] (tableau 5.2).

Les contributions de volume de $(K_u - K_4)$ pour les deux types de substrat sont du même ordre de grandeur. Seul un signe négatif de la composante de surface-interface obtenue par Krams sur Co/Cu(1 1 13) est à noter. Cette valeur négative de $(K_u - K_4)_{SI}$ est sans doute liée au fait que les films Co/Cu(1 1 13) aient été recouverts de cuivre pour être étudiés *ex situ*.

D'autres expériences ont été réalisées sur des films de cobalt déposés sur des échantillons de cuivre (001) courbés [30][31][37]. Ce type de substrats présente des largeurs de terrasses variables selon l'endroit de l'échantillon (schéma 5.3). Kawakami et Qiu montrent que H_s varie linéairement avec l'angle de coupe α [30] [31][37], H_s

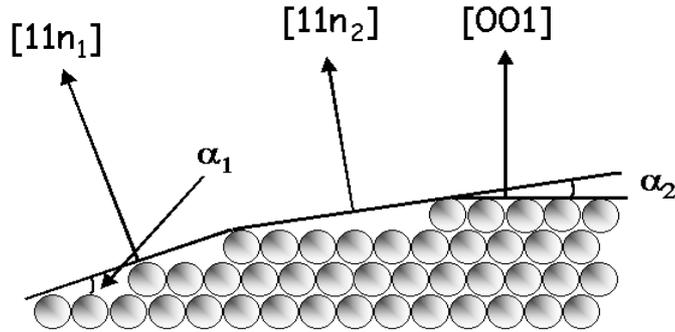


FIG. 5.3: Représentation schématique d'un cristal (001) courbé.

étant le décalage observé entre les deux boucles d'hystérésis sur les cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile (figure 5.4). Cette linéarité de H_s en fonction de α est observée pour des substrats ayant un angle de coupe inférieur à 6° et est attribuée à des effets de liaisons manquantes aux bords de marches. En effet, ils montrent grâce à des calculs que pour les petits angles de coupe, l'anisotropie de Néel varie linéairement avec α . Ils en concluent que l'origine de l'anisotropie uniaxiale est principalement due à la surface et aux liaisons rompues et non à des phénomènes magnétoélastiques.

D'autres études de propriétés magnétiques concernant des films Co/Cu(11n) recouverts par une faible quantité de cuivre inférieure à la monocouche montrent des résultats différents. En effet, sur de tels systèmes, l'anisotropie magnétique est toujours uniaxiale mais l'axe facile n'est plus selon la direction $[1\bar{1}0]$ mais selon $[110]$ c'est à dire perpendiculairement aux bords de marches [29][38]. Weber et al. montrent même qu'il existe une épaisseur critique de cuivre à partir de laquelle l'axe facile revient le long de la direction $[1\bar{1}0]$. Kawakami et al. montrent que les très faibles dépôts de cuivre provoquent une diminution de H_s [30]. Ils mettent en évidence que cette décroissance est due aux atomes de cuivre déposés le long des bords de marches. Une telle expérience souligne donc le rôle primordial joué par les atomes de bords de marches et confirme le fait que l'anisotropie magnétique uniaxiale est principalement due à la faible coordination des atomes de cobalt situés aux bords de marches.

Ainsi de manière brève, la littérature explique l'existence de l'anisotropie magnétique uniaxiale rencontrée sur des films Co/Cu(11n) principalement par une anisotropie de type Néel. Cette explication est souvent donnée de manière qualitative car peu de calculs d'anisotropie avec le modèle de Néel sont comparés avec des mesures de magnétisme. Certains auteurs attribuent également cette anisotropie uniaxiale à des relaxations structurales privilégiées le long des bords de marches [34].

Aucune étude corrélant des résultats structuraux avec des mesures magnétiques

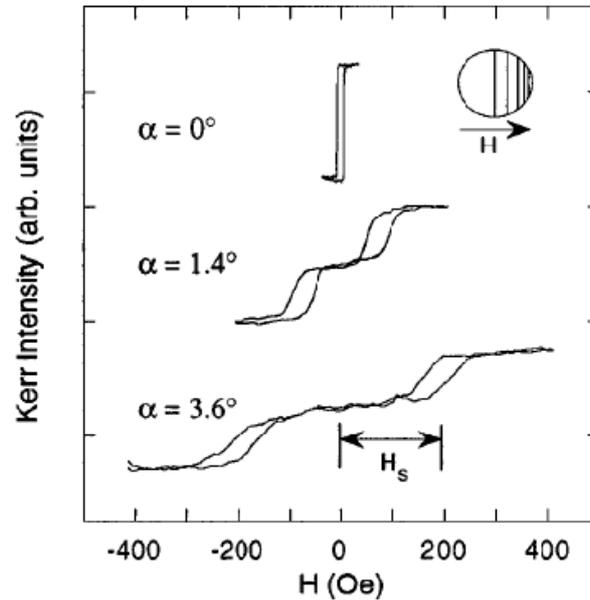


FIG. 5.4: Détermination de H_s sur les cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile $[110]$ d'un film de 8 MC de Co sur Cu(001) courbé (Kawakami et al.).

n'a été menée sur les films de Co/Cu(11n). Seul Weber et son équipe ont effectué des mesures de Kerr pendant la croissance du cobalt sur un substrat de cuivre (001) présentant un faible angle de coupe de $0,1^\circ$ [40]. Un tel substrat possède de larges terrasses d'environ 1000\AA . Ils montrent que la valeur de H_s déterminée selon l'axe difficile oscille au cours de la croissance avec une période d'une monocouche (figure 5.5). Ces oscillations sont identiques à celles observées en RHEED [40]. L'origine des variations de H_s est alors attribuée aux relaxations de la structure du cobalt lors de sa croissance pseudomorphique sur le cuivre (001).

5.3.2 Morphologie

La littérature offre peu d'articles sur la morphologie des films minces de cobalt déposés sur des surfaces vicinales de cuivre (11n). Les deux études rencontrées ont été réalisées par STM sur des films minces de cobalt sur Cu (1 1 17) [32] et sur un substrat ayant un angle de coupe de $3,4^\circ$ [22]. Cu (1 1 17) est un substrat présentant des terrasses d'orientation (001) séparées par des marches monoatomiques. La largeur des terrasses est de $\frac{17}{2}$ distances interatomiques ce qui représente une largeur de $21,7\text{\AA}$. Pour le second substrat, que l'on notera Cu($3,4^\circ$), la largeur moyenne des terrasses également d'orientation (001) est de 30\AA environ.

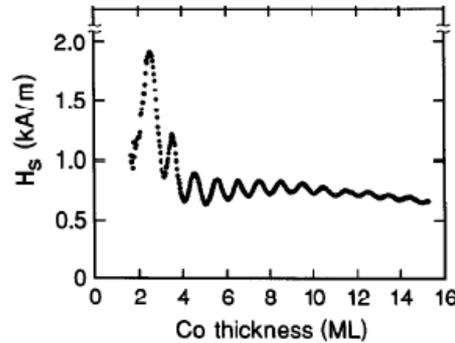


FIG. 5.5: Mesures de H_s effectuées par Weber et al. pendant le dépôt de cobalt sur une surface de cuivre (001) ayant un angle de coupe de $0,1^\circ$. Les oscillations de H_s au cours de la croissance sont attribuées à des relaxations du cobalt lorsque la couche est incomplète.

Ramsperger et al. [22] montrent que dès les faibles taux de couverture, 0,5 MC de cobalt sur Cu($3,4^\circ$), il y a destruction du réseau de marches et formation de larges îlots d'environ 20 à 50 Å de diamètre. Ces îlots sont sans doute formés de cuivre et de cobalt. Une telle morphologie, ne reproduisant pas le réseau régulier de marches du substrat, indique que la croissance sur les surfaces vicinales de cuivre s'écarte fortement du modèle couche par couche. Pour les dépôts de 2 MC de Co/Cu($3,4^\circ$), les îlots s'allongent dans la direction $[1\bar{1}0]$ parallèle aux bords des marches.

Les travaux de Giesen et al. [32] présentent des images de films de Co/Cu(1 1 17) à partir de 2,6 MC de cobalt. Pour 2,6 MC, le réseau de marches est fortement ondulé. Plus l'épaisseur augmente plus les bords de marches se lissent. A 15 MC, les images montrent des marches relativement droites mais cependant plus ondulées et plus larges que celles du substrat initial.

Ces résultats d'étude de morphologie indiquent que le dépôt de cobalt sur des surfaces vicinales perturbe fortement le substrat. Le cuivre ne reste pas figé mais subit une réorganisation. Giesen et al. [32] montrent également que la spectroscopie Auger n'est pas sensible à cette restructuration du cuivre car les spectres Auger obtenus pour des dépôts identiques de cobalt sur Cu(001) et Cu(1 1 17) sont similaires.

5.4 Conclusion bibliographique

Les paragraphes 5.2 et 5.3, sans être exhaustifs, permettent d'avoir un aperçu rapide sur les différentes études qui ont été menées sur les films de cobalt déposés sur Cu(001) et Cu(11n) ces dix dernières années. Ces résultats mettent en évidence

les propriétés magnétiques différentes des dépôts de cobalt sur des surfaces planes et vicinales de cuivre (001). Ces différences sont souvent attribuées à la morphologie et à la structure des films. La microscopie à effet tunnel apporte de nombreuses informations sur la morphologie et montre aisément une croissance différente du cobalt selon la présence ou non de marches sur le substrat. Il est à noter cependant que parmi les multiples expériences réalisées quasiment aucune ne fait de calculs précis d'anisotropie de Néel en fonction de la morphologie observée en STM. De plus, aucune étude ne fournit la structure précise des films minces de cobalt sur des surfaces vicinales pour déterminer l'anisotropie magnétoélastique. Nous allons donc grâce à nos mesures de magnéto-optique par effet Kerr, de structure par EXAFS de surface et de morphologie par STM pallier partiellement ce manque et tenter de corréler ces différents résultats.

Bibliographie

- [1] R. Allenspach, M. Stampanoni et A. Bischof, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 3344 (1990).
- [2] J. Pommier, P. Meyer, G. Pénissard, J. Ferré, P. Bruno et D. Renard, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2054 (1990).
- [3] T. Kingetsu et K. Sakai, *Phys. Rev. B* **48**, 4140 (1993).
- [4] C. Chappert et P. Bruno, *J. Appl. Phys.* **64**, 5736 (1988).
- [5] F. Nguyen Van Dau, M. Sussiau, A. Schuhl et P. Galtier, *J. Appl. Phys.* **81**, 4482 (1997).
- [6] A. Encinas, F. Nguyen Van Dau, A. Schuhl, F. Montaigne, M. Sussiau et P. Galtier, *J. Magn. Magn. Mater.* **198-199**, 15 (1999).
- [7] J. Chen et J. L. Erskine, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1212 (1992).
- [8] Di Jing Huang, Jaeyong Lee, G. A. Mulhollan et J. L. Erskine, *J. Appl. Phys.* **73**, 6751 (1993).
- [9] S. Chérifi, C. Boeglin, S. Stanescu, J. P. Deville, C. Mocuta, H. Magnan, P. Le Fèvre, P. Ohresser et N. B. Brookes, *Phys. Rev. B* **64**, 184405 (2001).
- [10] H. A. Dürr, G. Van der Laan, J. Vogel, G. Panaccione, N. B. Brookes, E. Dudzik et R. McGrath, *Phys. Rev. B* **58**, R11853 (1998).
- [11] U. Bovensiepen, Hyuk J. Choi et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **61**, 3235 (2000).
- [12] P. Gambardella, A. Dallmeyer, K. Maiti, M. C. Malagoli, W. Eberhardt, K. Kern, C. Carbone, *Nature*, **416**, 301 (2002).
- [13] P. Krams, F. Lauks, R. L. Stamps, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3674 (1992).
- [14] M. Kowalewski, C. M. Schneider et B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **47**, 8748 (1993).
- [15] O. Heckmann, H. Magnan, P. Le Fèvre, D. Chandesris et J.J. Rehr, *Surf. Sci.* **312**, 62 (1994).
- [16] A. Clarke, G. Jennings, R. F. Willis, P. J. Rous et J. B. Pendry, *Surf. Sci.* **187**, 327 (1987).

- [17] C. M. Schneider, P. Bressler, P. Schuster, J. Kirschner, J. J. de Miguel et R. Miranda, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1059 (1990).
- [18] J. J. Miguel, *J. Magn. Magn. Mat.* **91**, 1 (1991).
- [19] J. J. de Miguel, A. Cebollada, J. M. Gallego, S. Ferrer, R. Miranda, C. M. Schneider, P. Bressler, J. Garbe, K. Bethke et J. Kirschner, *Surf. Sci.* **211-212**, 732 (1989).
- [20] Patrick Le Fèvre, thèse de doctorat de l'université Paris XI (1995).
- [21] J. Fassbender, U. May, B. Schirmer, R. M. Jungblut, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4476 (1995).
- [22] U. Ramsperger, A. Vaterlaus, P. Pfäffli, U. Maier et D. Pescia, *Phys. Rev. B* **53**, 8001 (1996).
- [23] A. K. Schmid et J. Kirschner, *Ultramicroscopy* **42-44**, 483 (1992).
- [24] Hong Li et B. P. Tonner, *Surf. Sci.* **237**, 141 (1990).
- [25] S. Ferrer, E. Vlieg et I. K. Robinson, *Surf. Sci.* **250**, L363 (1991).
- [26] J. Fassbender, R. Allenspach et U. Düring, *Surf. Sci.* **383**, L742 (1997).
- [27] F. Nouvertné, U. May, M. Bamming, A. Rampe, U. Korte et G. Güntherodt, *Phys. Rev. B* **60**, 14382 (1999).
- [28] W. Wulfhekel, S. Knappmann, H. P. Oepen, *J. Mag. Mag. Mat.* **163**, 267 (1996).
- [29] W. Weber, C. H. Back, U. Ramsperger, A. Vaterlaus et R. Allenspach, *Phys. Rev. B* **52**, R14400 (1995).
- [30] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcía-Aparicio et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **58**, R5924 (1998).
- [31] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcía-Aparicio et Z. Q. Qiu, *J. Appl. Phys.* **85**, 4955 (1999).
- [32] M. Giesen, F. Schmitz et H. Ibach, *Surf. Sci.* **336**, 269 (1995).
- [33] W. Wulfhekel, S. Knappmann et H. P. Oepen, *J. Appl. Phys.* **79**, 988 (1996).
- [34] P. Krams, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. B* **49**, 3633 (1994).
- [35] H. P. Oepen, C. M. Schneider, D.S. Chuang, C. A. Ballentine et R.C. O'Handley, *J. Appl. Phys.* **73**, 6186 (1993).
- [36] A. Berger, U. Linke et H. P. Oepen, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 839 (1992).
- [37] Z. Q. Qiu et S. D. Bader, *Surf. Sci.* **438**, 319 (1999).
- [38] W. Weber, C. H. Back, A. Bischof, D. Pescia et R. Allenspach, *Nature*, **374**, 788 (1995).

- [39] W. Weber, C. H. Back, A. Bischof, Ch. Würsch et R. Allenspach, Phys. Rev. Lett. **76**, 1940 (1996).
- [40] W. Weber, A. Bischof, R. Allenspach, C. H. Back, J. Fassbender, U. May, B. Schirmer, R. M. Jungblut, G. Güntherodt et B. Hillebrands, Phys. Rev. B **54**, 4075 (1996).

Chapitre 6

Propriétés magnétiques du cobalt sur Cu(1 1 11) et Cu(115)

Les propriétés magnétiques des films minces de cobalt déposés sur des substrats à marches de cuivre Cu(1 1 11) et Cu(115) ont été étudiées grâce à des mesures d'effet Kerr magnéto-optiques. Cette technique permet de mesurer les cycles d'hystérésis du film magnétique en appliquant le champ magnétique dans différentes directions et par conséquent d'évaluer l'anisotropie magnétique. Nous avons vu au chapitre 3.4.2 qu'il est possible de déterminer à partir des cycles les constantes d'anisotropie magnétique uniaxiale K_u et biaxiale K_4 introduites dans le modèle de Stoner-Wohlfarth. Ce dernier simule le retournement de l'aimantation lorsqu'un champ magnétique est appliqué dans une direction donnée. Ces expériences ont été réalisées à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg en collaboration avec Fabrice Scheurer et Eric Beaupaire. Les descriptions techniques concernant le bâti expérimental sous ultra-vide sont faites dans le chapitre 4. La partie théorique présentant les modèles phénoménologiques utilisés permettant d'exploiter les cycles expérimentaux est exposée au chapitre 3.4.2. J'ai volontairement séparé la partie théorique de ce chapitre afin d'offrir une plus grande lisibilité des résultats expérimentaux.

Le premier paragraphe sera consacré à la présentation des cycles Kerr obtenus en fonction du taux de couverture de cobalt. Comme dans les autres bâtis expérimentaux, les films de cobalt sont évaporés à 300 K. Nous avons mesuré les propriétés magnétiques des films de 2,5 MC à 10 MC. L'analyse des dépôts sur Cu(1 1 11) et Cu(115) est menée en parallèle. Dans la seconde partie seront exposés les valeurs des constantes d'anisotropie magnétique extraites des cycles Kerr ainsi que des simulations de cycles. Nous aborderons rapidement les résultats obtenus sur des films de cobalt déposés sur Cu(1 1 11) et Cu(115) recouverts de 10 MC de cuivre pour comprendre le rôle joué par l'interface cobalt-cuivre avant de conclure.

6.1 Introduction

Nous avons réalisé des mesures magnéto-optiques par effet Kerr sur Co/Cu(11n) dans la géométrie longitudinale (chapitre 4, figure 4.11). Dans la configuration polaire, aucun signal n'a été obtenu montrant que l'aimantation était dans le plan des films. Lors de ces expériences, nous avons réalisé des cycles de retournement de l'aimantation en appliquant le champ dans le plan de la surface (11n) ($n = 11$ pour Cu(1 1 11) et $n = 5$ pour Cu (115)) et selon des directions comprises entre $[1\bar{1}0]$ parallèle aux bords de marches et $[n\bar{n}2]$ perpendiculaire aux bords de marches. Des cycles selon $[n\bar{n}2]$ ont principalement été effectués pour deux raisons : la première étant que cet axe est *a priori* l'axe difficile d'aimantation et que ce sont les mesures réalisées selon cette direction qui permettent la détermination des deux constantes d'anisotropie (K_u et K_4) (chapitre 3.4.2), la seconde raison est d'ordre technique. En effet, la modification de l'azimut de l'échantillon perturbe l'alignement LASER et le faisceau après avoir été réfléchi par l'échantillon tape souvent sur la paroi de l'enceinte au lieu de passer par le petit orifice prévu pour sa sortie.

Les graphes 6.2, 6.3 et 6.4 présentent des cycles Kerr obtenus sur Cu(1 1 11) et Cu(115) en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée. Les cycles obtenus en appliquant le champ extérieur selon la direction $[n\bar{n}2]$ (graphes 6.2 et 6.3) ont une forme similaire à ceux obtenus précédemment dans la littérature sur Cu(11n) dans la direction perpendiculaire aux bords de marches $[1][2][3]$. En appliquant le champ selon la direction $[1\bar{1}0]$ (parallèle aux bords de marches), les cycles Kerr sont carrés (graphe 6.4) c'est à dire caractéristiques d'un axe facile comme sur les études magnétiques précédentes menées sur des dépôts de cobalt sur des échantillons de cuivre (001) à marches $[1][2][3]$. On en conclut d'après ces premières observations que sur Cu(1 1 11) et Cu(115), la direction perpendiculaire aux bords de marches est un axe d'aimantation difficile tandis que $[1\bar{1}0]$ est un axe facile, alors que les dépôts de cobalt réalisés sur une surface plane de cuivre (001) présentent une anisotropie biaxiale i.e. l'aimantation est facile selon les deux directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ (schéma 6.1).

Nous allons analyser ces cycles avec le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth en incluant deux constantes d'anisotropie (K_u et K_4). La densité d'énergie libre du film magnétique dans le plan (001) s'écrira donc avec un terme d'anisotropie biaxiale (comme celle rencontrée pour les films de cobalt sur Cu(001)) auquel s'ajoute une composante uniaxiale :

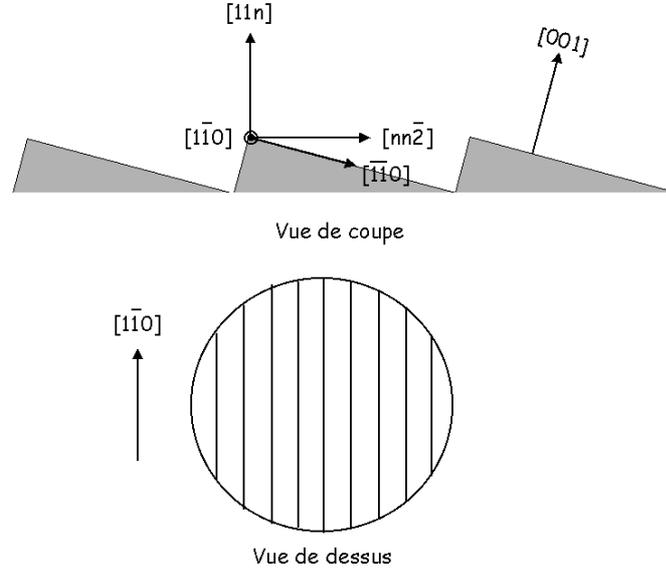


FIG. 6.1: Schéma permettant de visualiser les différentes directions cristallographiques nommées dans le texte.

$$E(\Phi) = \underbrace{K_u \sin^2 \Phi}_{\text{Composante uniaxiale}} + \underbrace{\frac{K_4}{4} \cos^2 2\Phi}_{\text{Composante biaxiale}} - \underbrace{M_s H \cos(\theta - \Phi)}_{\text{Interaction champ - aimantation}} \quad (6.1)$$

avec K_u (K_4) respectivement la constante d'anisotropie uniaxiale (biaxiale), M_s l'aimantation à saturation et H le champ extérieur appliqué. Les angles θ et Φ sont représentés sur le schéma 6.5. Pour plus de détails nous renvoyons le lecteur au chapitre 2, dans lequel le modèle de Stoner-Wohlfarth est décrit précisément. Les cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile permettront de déterminer les valeurs des deux constantes K_u et K_4 .

6.2 Cycles Kerr selon l'axe difficile pour Co/Cu(1 1 1) et Co/Cu(115)

6.2.1 Observations

Les cycles réalisés selon l'axe difficile pour Cu(1 1 1) et Cu(115) (graphes 6.2 et 6.3) ne sont pas totalement symétriques par rapport à l'origine. Cette dissymétrie est

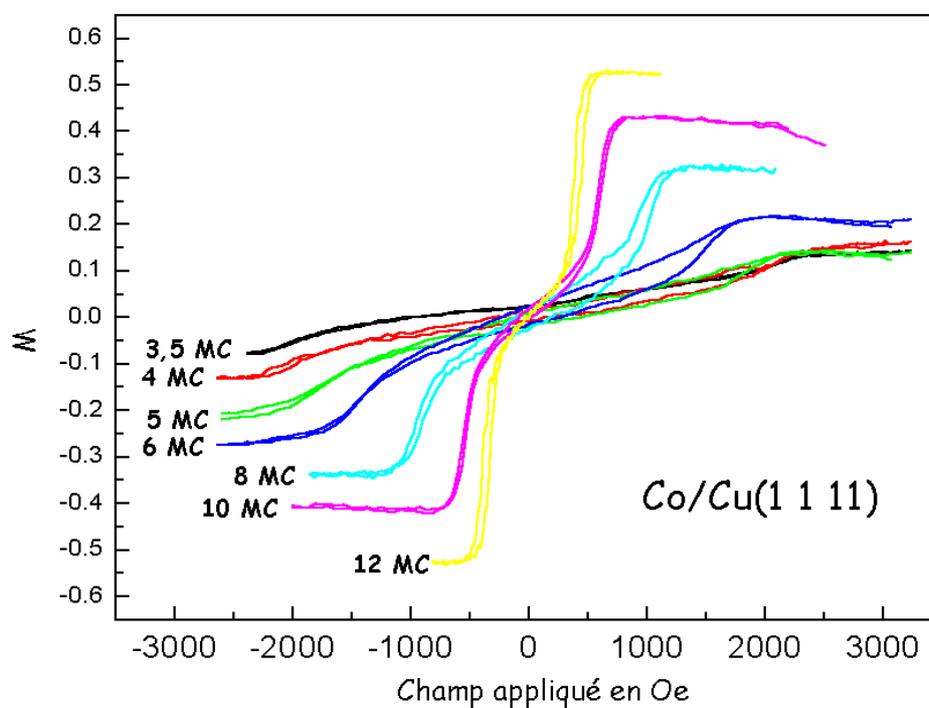


FIG. 6.2: Cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile pour différentes épaisseurs de cobalt déposées sur Cu(1 1 1).

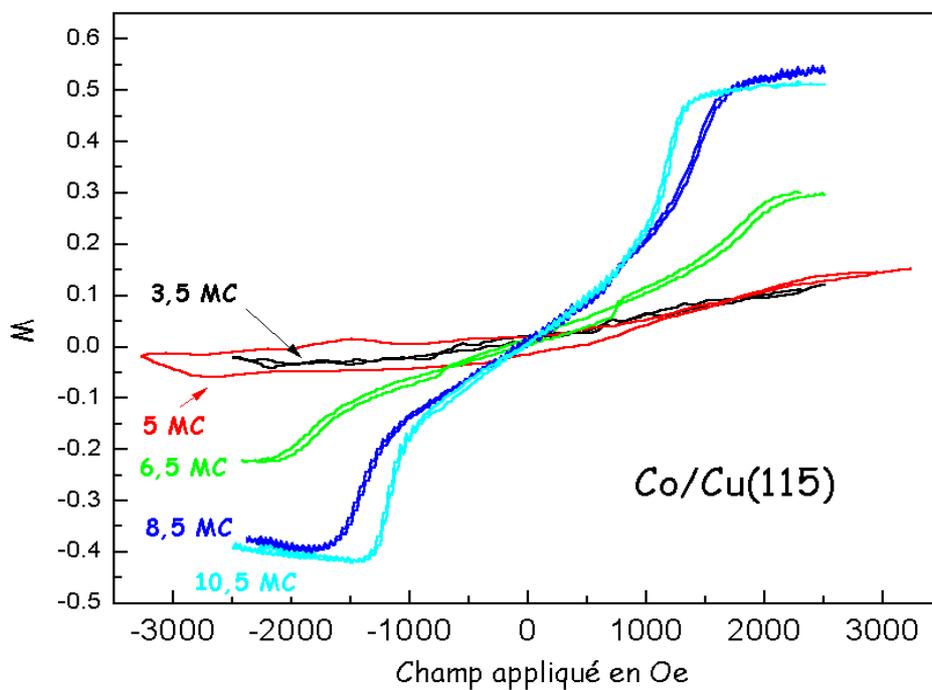


FIG. 6.3: Cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile pour différentes épaisseurs de cobalt déposées sur Cu(115).

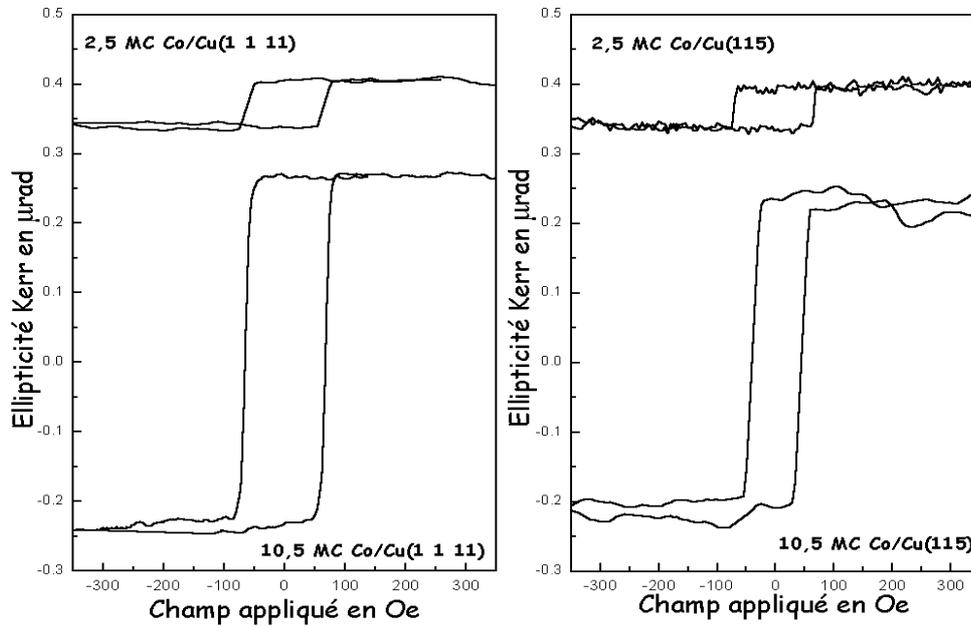


FIG. 6.4: Cycles Kerr obtenus pour différentes épaisseurs de cobalt déposées sur Cu(1 1 1) et Cu(115) quand le champ est appliqué selon $[1\bar{1}0]$ i. e. axe facile.

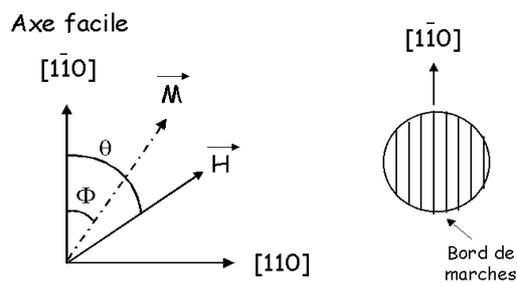


FIG. 6.5: Schéma représentant les différents angles utilisés dans l'expression de la densité d'énergie libre.

probablement liée à des problèmes techniques de mouvement de l'échantillon pendant le balayage en champ.

Regardons tout d'abord à partir de quelle épaisseur le premier cycle Kerr est mesuré. Sur un film de cobalt déposé sur Cu(001), le premier cycle mesurable à température ambiante est observé dès 1,8 MC en dessous de cette épaisseur critique, le cobalt est encore magnétique, mais la température de Curie a chuté brusquement [4][5]. Sur les surfaces vicinales, les mesures selon l'axe facile montrent que dès 2,5 MC, nous observons des cycles d'hystérésis sur les deux substrats Cu(1 1 11) et Cu(115) (figure 6.4). Ainsi le début des mesures de cycles Kerr s'effectue pour des épaisseurs comparables à celle observée sur Co/Cu(001).

Selon l'axe de difficile aimantation, nous n'arrivons pas à saturer l'aimantation pour des champs inférieurs à 3000 Oe pour des épaisseurs de cobalt inférieures à 5 à 6 MC de cobalt sur Cu(1 1 5) alors que sur Co/Cu(1 1 11) la saturation est obtenue dès 3 MC. Ceci montre la différence d'anisotropie magnétique existant entre les dépôts effectués sur Cu(1 1 11) et sur Cu(115). Regardons l'évolution des cycles avec l'épaisseur de cobalt toujours selon l'axe $[\overline{11}2]$. Pour chacun des cycles, nous avons mesuré la valeur de H_s , H_s étant la distance médiane séparant les deux boucles d'hystérésis observée selon l'axe difficile (figure 6.7). Il est à noter que plus la valeur de H_s est grande, plus il est nécessaire d'appliquer un champ important pour atteindre la saturation magnétique du film. Ainsi la valeur de H_s est un indicateur de la "difficulté" de l'axe. H_s est tracé en fonction de l'épaisseur sur le graphe 6.6. Nous observons sur ces tracés que H_s est plus important sur Co/Cu(115) que sur Co/Cu(1 1 11) pour une même épaisseur par conséquent on déduit que pour un dépôt de cobalt identique, l'anisotropie magnétique est plus grande sur Co/Cu(115) que sur Co/Cu(1 1 11). Cette remarque laisse à penser que le nombre de marches joue un rôle dans le magnétisme de ces dépôts. Ainsi plus il y a de marches plus l'anisotropie uniaxiale semble importante. Les atomes situés en bords de marches, ayant un nombre de voisins restreint, doivent être vraisemblablement les principaux acteurs contribuant à l'anisotropie uniaxiale magnétique. Néel montre [8] que le manque de voisins peut générer des anisotropies magnétiques. Cette dépendance de l'anisotropie avec la densité de marches a déjà été observée sur des cristaux courbés [2][3][15], sur lesquels les auteurs montrent que H_s est proportionnel à α , l'angle de coupe par rapport à la surface (001). La relation entre α et la largeur des terrasses l est $\tan \alpha = \frac{h}{l}$, avec h la hauteur des marches monoatomiques séparant deux terrasses. Pour un substrat de cuivre h est égal à 1,8 Å. Dans le cas de Kawakami et al. [2][3] et Qiu et al. [15], les angles de coupe sont assez petits devant ceux de Cu(1 1 11) et Cu(115) et on a alors $\alpha \approx \frac{h}{l}$. Ces auteurs montrent avec H_s proportionnel à α que pour les substrats présentant de larges terrasses ou un angle de coupe petit, H_s est directement proportionnel au nombre de marches.

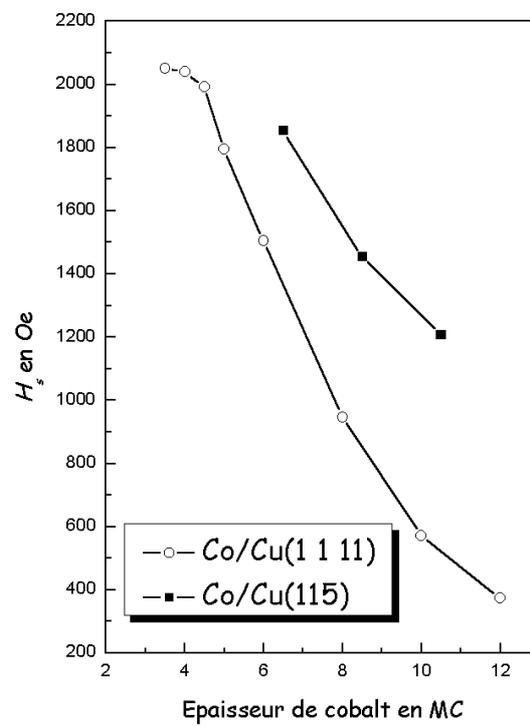


FIG. 6.6: Tracé de H_s en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée sur Cu(1 1 1) et Cu(115).

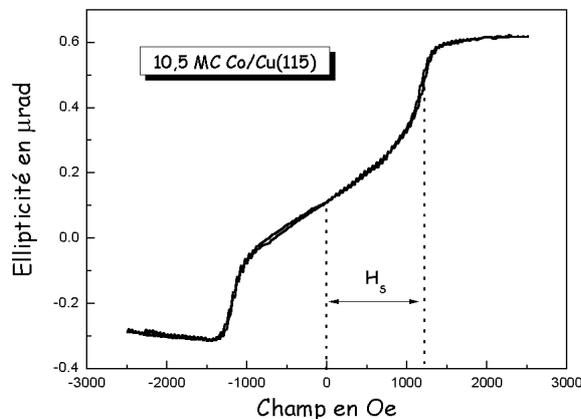


FIG. 6.7: Cycle Kerr obtenu selon l'axe $[nn\bar{2}]$ sur un film de 10,5 MC Co/Cu(115). Ce schéma permet de définir H_s .

Pour un même substrat, le graphe 6.6 montre que la valeur de H_s est d'autant plus petite que le dépôt de cobalt est important. Cette observation tend à montrer l'origine surfacique de l'anisotropie uniaxiale. En effet, plus la quantité de cobalt déposée est importante, plus la proportion d'atomes d'adsorbat situés en surface est petite, ainsi leur contribution anisotrope est moins grande face à celles des atomes de "volume" ce qui a tendance à diminuer l'anisotropie magnétique uniaxiale.

Si l'on compare nos cycles Kerr selon l'axe dur avec ceux observés sur des substrats de cuivre présentant de plus larges terrasses (figure 2.7 obtenue sur Co/Cu(1 1 17) [1]), on remarque que les boucles d'hystérésis sont aplaties dans notre cas. Cette zone est interprétée par Millev et al. comme une région de coexistence de deux minima locaux de la densité d'énergie libre (équation 6.1) [6][7]. Un minimum est observé pour une aimantation selon la direction du champ (dans notre cas $[nn\bar{2}]$) et le second pour une aimantation située entre l'axe facile et l'axe difficile.

6.2.2 Amplitude de cycle et quantité de cobalt

De manière générale, l'amplitude des cycles est proportionnelle à l'aimantation. Ainsi dans le cas où le moment magnétique par atome reste constant avec l'épaisseur de cobalt, l'amplitude des cycles sera proportionnelle à la quantité d'adsorbat déposée. La demi-amplitude des cycles selon l'axe difficile est tracée sur la figure 6.8. Pour les mesures obtenues sur Cu(1 1 11) présentant un nombre plus important de points, l'amplitude du cycle a un comportement assez linéaire en fonction de l'épaisseur présumée

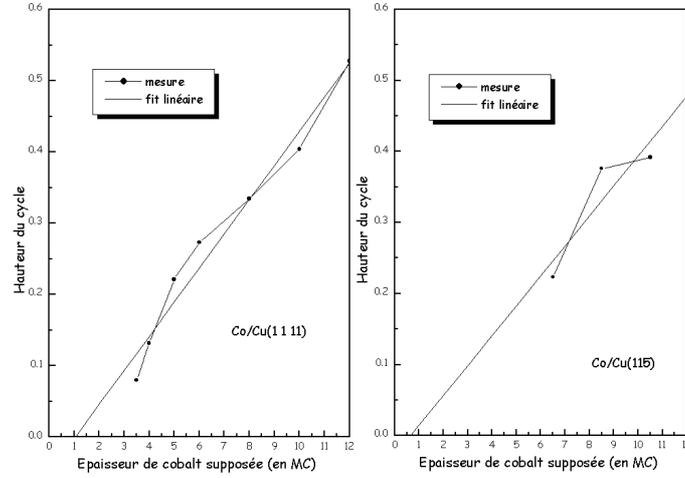


FIG. 6.8: Tracé de la hauteur de cycle Kerr mesurée sur les graphes 6.2 et 6.3 en fonction de l'épaisseur présumée de cobalt.

de cobalt. On note que la droite ne passe pas par l'origine. Ceci peut être lié aux barres d'erreurs sur les épaisseurs déposées qui sont environ égales à une monocouche et/ou à l'interdiffusion (graphe 6.8).

6.3 Détermination de K_4 et K_u sur Co/Cu(1 1 1) et Co/Cu(115)

Afin de pouvoir comparer nos résultats expérimentaux avec les modèles théoriques (modèle magnétoélastique et modèle de Néel), nous avons extrait des cycles Kerr les constantes d'anisotropie K_u et K_4 . Nous avons utilisé deux méthodes d'extraction des constantes d'anisotropie magnétique à partir des cycles obtenus selon l'axe dur : la méthode appelée *classique* et celle dite de *Millev*. Ces deux techniques de calcul de K_u et K_4 sont basées sur le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth et sont décrites dans le paragraphe 2.2.2. Il est à noter que dans notre cas et d'après les figures 6.7 et 2.9, nous avons $H_L \approx H_S$. Ces techniques fournissent des résultats qui sont présentés dans les tableaux 9.4 et 9.5 respectivement pour Co/Cu(1 1 1) et pour Co/Cu(115). Nous observons que la méthode *classique* fournit la plupart du temps des valeurs de K_u plus élevée que la méthode de *Millev*. La méthode de *Millev* donne toujours une valeur négative de K_4 comme ce qui a été mesuré sur les films Co/Cu(001) alors que la méthode *classique* montre une variation de signe de la constante biaxiale avec l'épaisseur.

MC de Co sur Cu(1 1 11)	K_u Millev 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Millev 10^5 erg.cm^{-3}	K_u Classique 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Classique 10^5 erg.cm^{-3}
3,5	$1,8 \pm 0,2$	-3 ± 2	$2,9 \pm 0,2$	7 ± 2
4	$2,1 \pm 0,2$	-6 ± 2	$2,9 \pm 0,2$	1 ± 2
4,5	$1,8 \pm 0,2$	-3 ± 2	$2,8 \pm 0,2$	7 ± 2
5	$1,7 \pm 0,3$	-4 ± 3	$2,5 \pm 0,3$	3 ± 3
6	$1,5 \pm 0,3$	-4 ± 3	$2,1 \pm 0,3$	1 ± 3
8	$1,21 \pm 0,07$	$-5,4 \pm 0,7$	$1,34 \pm 0,07$	$-4,1 \pm 0,7$
10	$0,83 \pm 0,05$	$-4,3 \pm 0,5$	$0,81 \pm 0,05$	$-4,4 \pm 0,5$
12	$0,76 \pm 0,05$	$-4,9 \pm 0,5$	$0,53 \pm 0,05$	$7,3 \pm 0,5$

TAB. 6.1: Constantes d'anisotropie magnétique sur Co/Cu(1 1 11) en fonction de l'épaisseur.

MC de Co sur Cu(115)	K_u Millev 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Millev 10^5 erg.cm^{-3}	K_u Classique 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Classique 10^5 erg.cm^{-3}
6,5	$1,85 \pm 0,1$	$-5,4 \pm 1,2$	$2,6 \pm 0,1$	$2 \pm 1,2$
8,5	$1,5 \pm 0,2$	$-5,2 \pm 2,0$	$2,1 \pm 0,2$	$-0,03 \pm 2,0$
10,5	$1,5 \pm 0,2$	$-6,1 \pm 1,9$	$1,7 \pm 0,2$	3 ± 2

TAB. 6.2: Constantes d'anisotropie magnétique sur Co/Cu(115) en fonction de l'épaisseur.

6.3.1 Simulations des cycles avec les valeurs expérimentales de K_u et K_4

Afin de déterminer quelle était la méthode d'extraction des constantes d'anisotropie la plus appropriée, nous avons comparé les spectres expérimentaux avec des simulations de cycles Kerr utilisant les valeurs de K_u et K_4 des tableaux 9.4 et 9.5. Plus précisément, les valeurs de K_u et K_4 ont été introduites dans l'expression de la densité d'énergie libre du film de cobalt (formule 6.1). Les simulations des cycles Kerr ont été obtenues en déterminant pour chacune des valeurs du champ, l'angle Φ pour lequel la densité d'énergie libre est minimale. Nous partons d'une situation saturée avec une valeur élevée du champ H pour laquelle il n'existe qu'un minimum d'énergie pour $\Phi = \Phi_1$. L'aimantation forme donc un angle Φ_1 avec l'axe $[1\bar{1}0]$, la valeur de Φ_1 pouvant changer avec la valeur de H . En réduisant le champ, il peut apparaître un deuxième minimum Φ_2 qui est d'abord à une énergie plus élevée que Φ_1 , l'aimantation reste alors suivant Φ_1 . Le minimum en Φ_2 peut devenir plus stable que celui observé en Φ_1 toutefois, nous supposons que l'aimantation reste selon Φ_1 et ne franchit pas la barrière séparant les deux minima. C'est au moment où la barrière s'annule (point d'inflexion en Φ_1 sur $E(\Phi)$) que l'aimantation bascule en Φ_2 . Ainsi, il est alors possible de calculer la projection de l'aimantation $M \sin \Phi$ sur l'axe difficile en fonction du champ et donc de tracer les cycles Kerr.

La comparaison entre les cycles simulés et les cycles expérimentaux est présentée pour Co/Cu(1 1 11) sur les graphes 6.9. De manière évidente, les constantes déterminées avec la méthode dite de *Millev* offrent les simulations les plus proches de l'expérience notamment pour les faibles épaisseurs de cobalt. Cette méthode est basée sur le modèle de Stoner-Wohlfarth et aucune hypothèse simplificatrice n'a été faite pour déterminer K_u et K_4 contrairement au modèle *classique*. On en déduit donc que le modèle Stoner-Wohlfarth qui introduit une composante uniaxiale et une composante biaxiale reflète assez bien nos mesures. Il est à noter que ce modèle a néanmoins des limites : la principale hypothèse réalisée dans cette simulation est de considérer que le retournement de l'aimantation s'effectue de manière cohérente i.e. tous les spins sont alignés et tournent ensemble avec l'intensité grandissante du champ extérieur. Nos données auraient peut-être pu être simulées avec d'autres modèles où la rotation n'est plus cohérente mais s'effectue à partir de la nucléation de domaines puis par propagation des parois des domaines quand l'intensité du champ augmente [10]. Nos simulations ont été réalisées en utilisant la valeur de l'aimantation à saturation M_s déterminée par Bland et al. sur Co/Cu(001) [9]. D'après le bon accord expérience-théorie, nous en concluons que la valeur de M_s du cobalt sur Cu(001) et sur Cu(11n) doit être identique.

Remarque : Nous utiliserons dorénavant les valeurs des constantes d'anisotropie

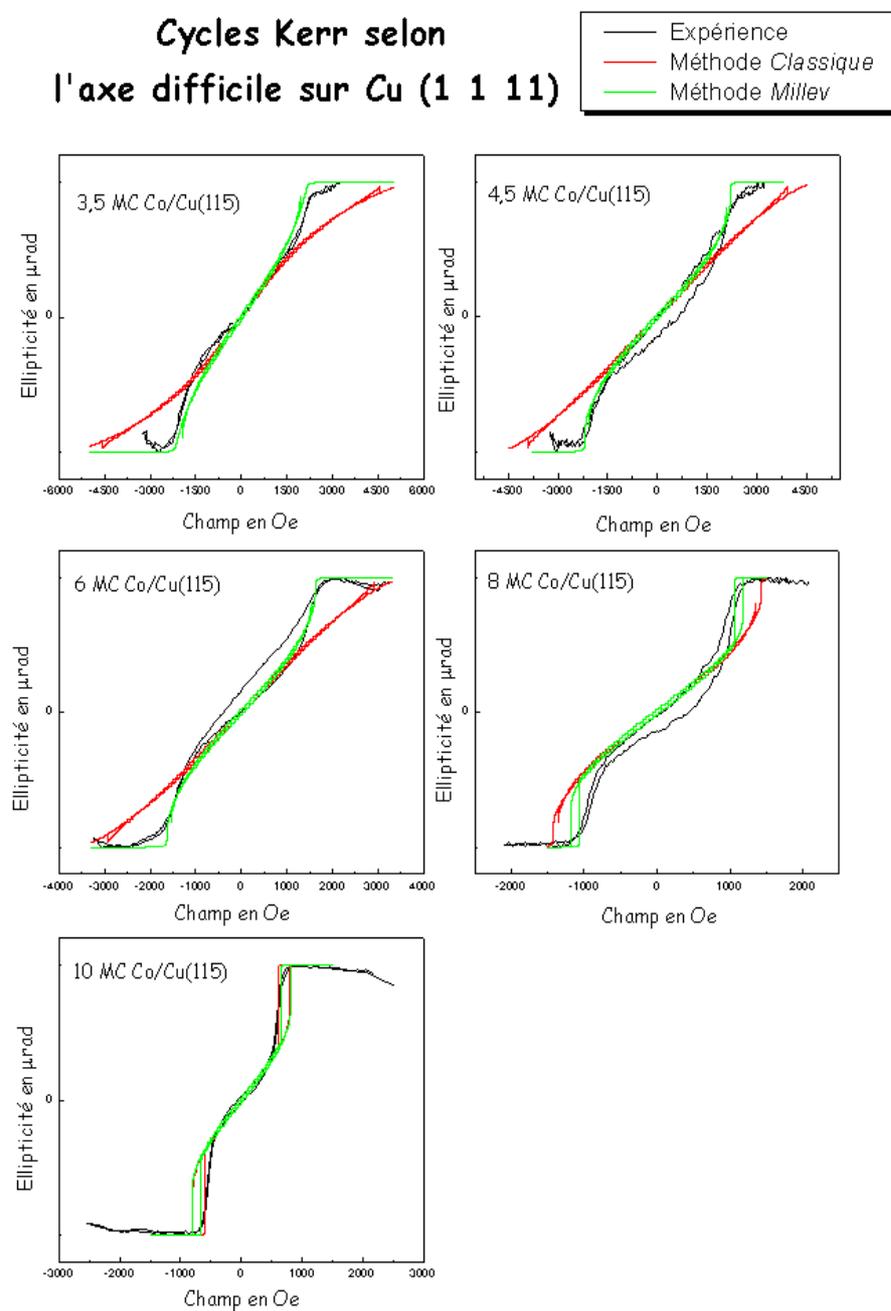


FIG. 6.9: Comparaison de différents cycles Kerr selon l'axe difficile sur Co/Cu(1 1 1) avec les simulations obtenues grâce aux constantes déterminées avec la méthode classique et la méthode dite de Millev.

K_u et K_4 obtenues par la méthode dite de *Millev*.

6.3.2 Origine surfacique ou volumique de K_u et K_4 ?

Dans le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth, les constantes sont souvent écrites avec une contribution de volume (K_4^V et K_u^V) et une contribution de surface-interface (K_4^{SI} et K_u^{SI}) qui s'expriment par :

$$K_4 = K_4^V + \frac{1}{d}K_4^{SI} \quad \text{et} \quad K_u = K_u^V + \frac{1}{d}K_u^{SI} \quad (6.2)$$

avec d l'épaisseur du dépôt de cobalt.

Afin de déterminer l'origine de K_4 et K_u , nous avons donc tracé sur le graphe 6.10, le produit $K_4 \times d$ et $K_u \times d$ pour Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115).

Comportement de $K_4 \times d$

D'après la figure 6.10, nous montrons que $K_4 \times d$ varie linéairement en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée aussi bien sur Cu(1 1 11) que sur Cu(115) avec une ordonnée à l'origine proche de zéro. Ceci signifie d'après la formule 6.2 que la constante biaxiale n'a pas de contribution de surface et qu'elle est due aux atomes de "volume". De plus, il est à noter que pour les deux substrats les valeurs de $K_4 \times d$ sont très proches. Nos mesures sur Co/Cu(1 1 11) et sur Co/Cu(115) ont été réalisées dans des conditions similaires, on peut donc penser que la similitude des résultats est bien réelle. Krams [11] et Kowalewski [12] ont déterminé K_4 et K_u sur des dépôts de Co/Cu(001), leurs valeurs sont assez différentes (graphe 6.11). Il est à noter qu'ils ont utilisé deux techniques expérimentales différentes (diffusion Brillouin et résonance ferromagnétique). En comparant nos valeurs avec celles obtenues sur Co/Cu(001), on remarque la valeur de K_4 obtenue pour des films déposés sur des surfaces vicinales est plus petite que celle obtenue sur un substrat plat de cuivre.

Nous avons également représenté sur le graphe 6.11, la variation de $K_4 \times d$ observée par Krams et al. sur Co/Cu(1 1 13) par diffusion Brillouin [13]. Cu (1 1 13) présente des terrasses régulières de largeur égale à 16,6 Å, largeur supérieure à celle observée sur Cu(1 1 11) (14 Å). $(K_4 \times d)_{Cu(1\ 1\ 13)}$ est situé entre $(K_4 \times d)_{Cu(001)}$ et $(K_4 \times d)_{Cu(1\ 1\ 11)}$. Contrairement aux dépôts réalisés sur les autres substrats, K_4 sur Cu(1 1 13) possède un terme de surface non négligeable (cf. ordonnée à l'origine), mais dans cet exemple le film de cobalt est recouvert par 20 MC de cuivre. D'après le graphe 6.11, pour une épaisseur donnée la tendance observée est une valeur de $|K_4 \times d|$ d'autant plus petite que la surface comporte de marches, mais si $|K_4 \times d|_{Cu(001)}$ est supérieure à $|K_4 \times d|_{Cu(11n)}$ avec $n = 5, 11$ et 13 , nous n'arrivons pas à distinguer les valeurs de

$|K_4 \times d|_{Cu(115)}$ de $|K_4 \times d|_{Cu(1111)}$ ce qui est sans doute lié aux grandes barres d'erreurs présentent sur la mesure de K_4 . On peut donc alors imaginer que la différence observée sur $K_4 \times d$ par Krams et Kowalewski pour Co/Cu(001) peut être due au fait que l'échantillon de ce dernier présentait un plus grand nombre de marches résiduelles.

La constante d'anisotropie magnétique K_4 présente sur les films de cobalt évaporés sur Cu(001) est due au couplage spin-orbite (chapitre 2.1). Cette interaction couple le spin à la densité de charge dans le cristal et par conséquent est sensible au réseau cristallographique. Le signe négatif de K_4 indique que l'aimantation pour des raisons de minimisation de l'énergie aura tendance à se diriger selon les axes $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. Pour les films Co/Cu(11n), K_4 a également comme origine le couplage-spin orbite. Sa valeur légèrement supérieure est sans doute liée au fait que l'aimantation se situe dans le plan (11n) et non plus selon (001) (cf. page 23) et que les deux axes faciles de l'anisotropie biaxiale soient alors $[1\bar{1}0]$ et $[nn\bar{2}]$ cette dernière étant légèrement différente de $[110]$.

Comportement de $K_u \times d$

D'après le graphe 6.10, on note la différence de comportement de $K_u \times d$ entre les deux substrats de cuivre Cu(1 1 11) et Cu(115). Les films évaporés sur le substrat présentant les marches les plus étroites montrent une anisotropie uniaxiale plus importante que ceux sur Cu(1 1 11). Les mesures effectuées sur Co/Cu(1 1 13) par diffusion Brillouin [13] confirment cette tendance i.e. plus la surface présente des marches plus l'anisotropie uniaxiale est grande (graphe 6.12). La constante K_u , non présente sur les films Co/Cu(001), est intimement liée à la présence des marches. Les principales origines de l'anisotropie uniaxiale peuvent être attribuées à des relaxations du cobalt particulières sur Co/Cu(11n) et à une morphologie différente de la surface et de l'interface. Nous verrons par la suite, que la structure et la morphologie varient toutes les deux en fonction de l'épaisseur des films. C'est pour cette raison que nous n'avons pas voulu ajuster les données expérimentales $K_u \times d$ avec une droite ce qui signifierait que la contribution de volume de celle de surface-interface sont constantes avec l'épaisseur. La simulation de K_u qui sera effectuée au chapitre 9 va permettre d'estimer ces deux contributions : le modèle magnétoélastique en simulant la contribution de K_u due aux relaxations structurales et le modèle de Néel déterminera l'anisotropie engendrée par l'interface cobalt-cuivre et celle créée par les liaisons manquantes à la surface.

6.4 Mesures Kerr sur films de cobalt recouverts de cuivre

Afin d'estimer l'influence de l'interface cobalt-cuivre, nous avons également étudié le retournement de l'aimantation sur des films de 5 MC de cobalt sur Cu(1 1 11)

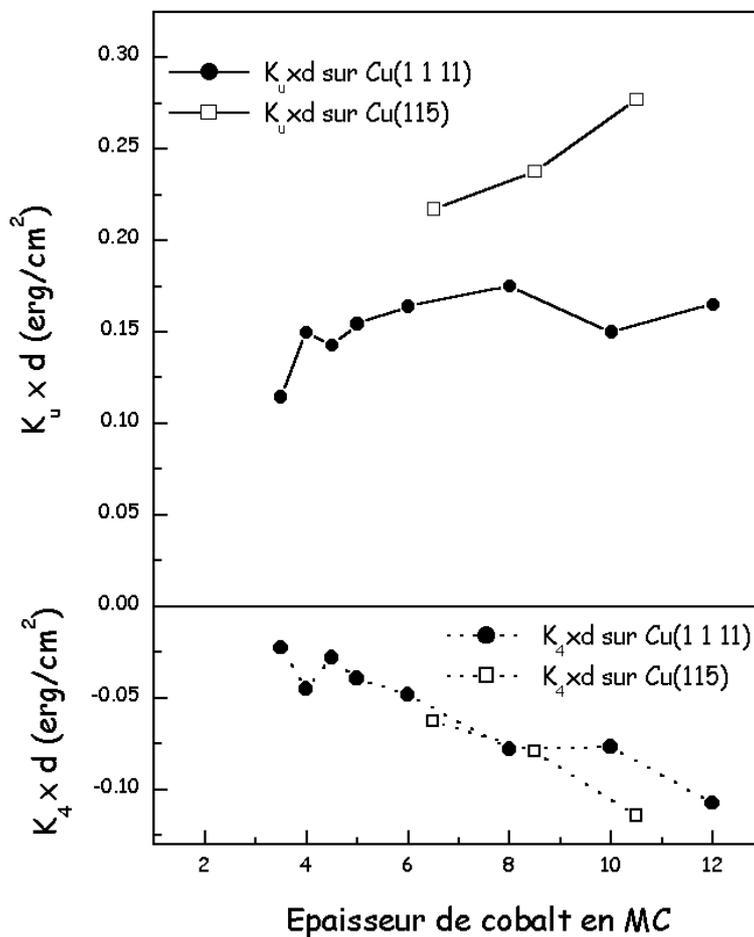


FIG. 6.10: Tracé de $K_u \times d$ et $K_4 \times d$ pour Cu(1 1 1) et Cu(115) avec d l'épaisseur de cobalt déposée.

5 MC de Co sur Cu(1 1 1)	K_u Millev 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Millev 10^5 erg.cm^{-3}
non recouvert	$1,7 \pm 0,3$	$-4 \pm 3,0$
recouvert de 10 MC de cuivre	$0,3 \pm 0,3$	$-2 \pm 3,0$

TAB. 6.3: Constantes d'anisotropie magnétique mesurées sur un film de 5 MC de cobalt évaporé sur Cu(1 1 1) recouvert et non recouvert de 10 MC de cuivre.

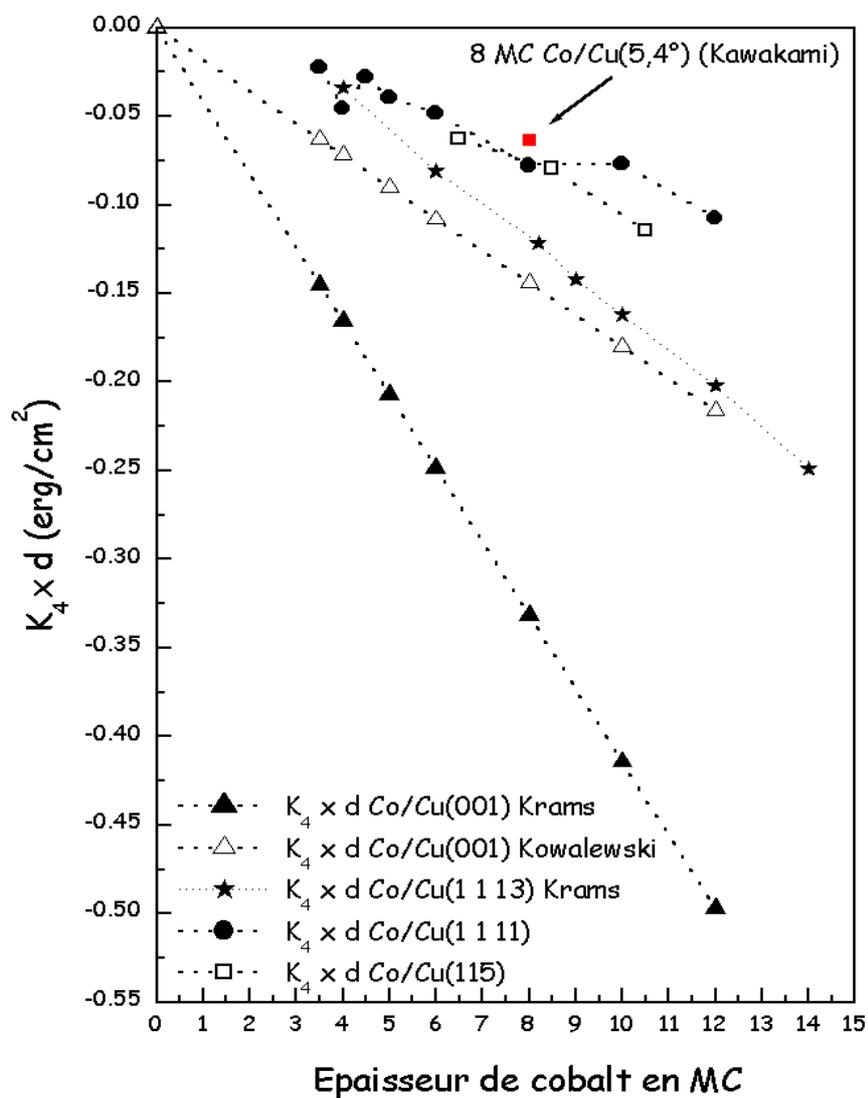


FIG. 6.11: Comparaison de nos valeurs de $K_4 \times d$ obtenues sur Co/Cu(1 1 1) et Co/Cu(115) avec celles de Co/Cu(001) observées par Krams et al. [10] en diffusion Brillouin et par Kowalewski et al. [11] en résonance ferromagnétique et également celles de Krams et al. [12] sur Co/Cu(1 1 13).

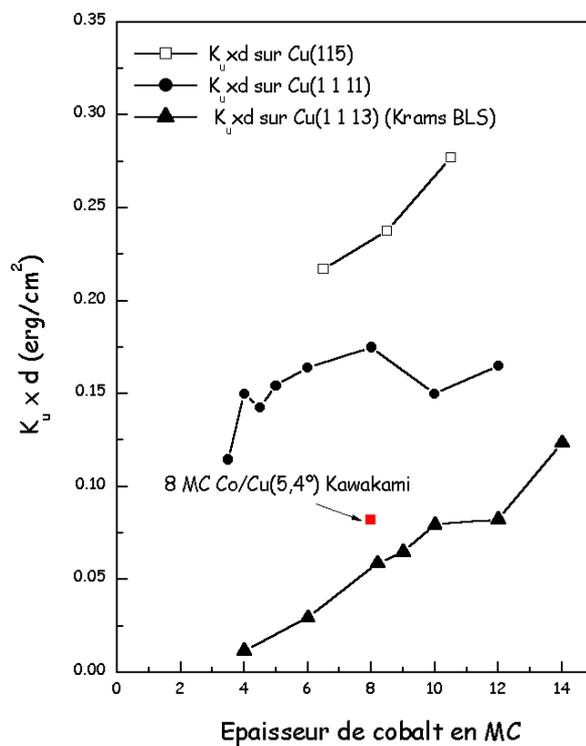


FIG. 6.12: Comparaison de $K_u \times d$ obtenus pour Co/Cu(1 1 1), Co/Cu(115) et Co/Cu(1 1 13) de la référence [12].

Sur Cu(115)	K_u Millev 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Millev 10^5 erg.cm^{-3}
6,5 MC Co/Cu(115)	$1,8 \pm 0,1$	$-5,4 \pm 1,2$
10 MC Cu/5 MC Co/Cu(115)	$1,360 \pm 0,1$	$-7,2 \pm 1,0$

TAB. 6.4: Constantes d'anisotropie magnétique mesurées à partir des cycles obtenus sur des films de 6,5 MC et 5 MC de cobalt sur Cu(115) respectivement non recouvert et recouvert de 5 MC ce cuivre .

8 MC de Co sur Cu(11n) Kawakami [3]	K_u Millev 10^6 erg.cm^{-3}	K_4 Millev 10^5 erg.cm^{-3}
non recouvert	$0,6 \pm 0,3$	$-4 \pm 3,0$
recouvert de 0,09 MC de cuivre	$0,4 \pm 0,3$	$-4 \pm 3,0$

TAB. 6.5: Constantes d'anisotropie magnétique mesurées à partir des cycles obtenus par Kawakami et al. sur un film de 8 MC de cobalt évaporé sur Cu(5,4°) non recouvert et recouvert de 0,09 MC de cuivre .

et Cu(1 1 5) recouverts par 10 MC de cuivre. Ces expériences ont été réalisées par Eric Beaupaire à l'IPCMS par mesure de l'effet Kerr magnéto-optique mais cette fois-ci *ex-situ*. Les cycles sont présentés sur le graphe 6.13. De manière identique aux dépôts de cobalt non recouverts, l'axe $[1\bar{1}0]$ est un axe facile, la forme des cycles selon la direction $[\text{nn}\bar{2}]$ est celle d'un axe difficile et sur Cu/Co/Cu(115) la valeur de H_s est plus grande que sur Cu/Co/Cu(1 1 11). Comme pour les films non recouverts de cuivre, nous avons mesuré les valeurs de K_u par la méthode dite de *Millev* pour ces films (tableaux 6.3, 6.4). Nous observons que les valeurs de K_u sont inférieures à celles des films d'épaisseur comparables non recouverts de cuivre (tableaux 6.3, 6.4).

Kawakami et al. ont également étudié le magnétisme par Kerr de films de cobalt recouvert de cuivre déposés sur un substrat de cuivre (001) à marches. Leur étude est présentée dans la référence [3] et les cycles Kerr sont tracés sur le graphe 6.14. Plus précisément leur étude a été réalisée sur un film de 8 MC de cobalt évaporé sur un substrat de cuivre Cu(001) à marches ayant un angle de coupe selon la direction $[110]$ de 5,4 °. Un tel échantillon de cuivre présente des terrasses d'une largeur d'environ 19 Å, plus grandes que celles de Cu(1 1 11). D'après leurs cycles réalisés sur le film de cobalt nu puis recouvert de 0,09 MC de cuivre, nous avons extrait avec la méthode de *Millev* les valeurs de K_u et K_4 qui sont regroupées dans le tableau 6.5. Ces résultats confirment l'observation faite sur Co/Cu(1 1 11) concernant la diminution de l'anisotropie uniaxiale avec le dépôt de cuivre à la surface de l'échantillon.

Weber et al. [14] ont réalisé des expériences sur un cristal de cuivre (001) présentant un faible angle de coupe de 1,6 °. Un tel angle crée des marches monoatomiques avec des grandes terrasses d'environ 65 Å. Sur un dépôt de 12 MC de cobalt sur Cu(1,6 °), ils montrent également que la direction perpendiculaire aux bords de marches est un axe difficile tandis que l'axe $[1\bar{1}0]$ est une direction de facile aimantation. Dans leur cas, le substrat de cuivre présentant peu de marches par rapport à Cu(1 1 11) ou Cu(115), leur valeur de H_s est donc très petite. Lorsqu'ils recouvrent ce dépôt de 0,06 MC de cuivre, un changement de comportement magnétique a lieu. La direction

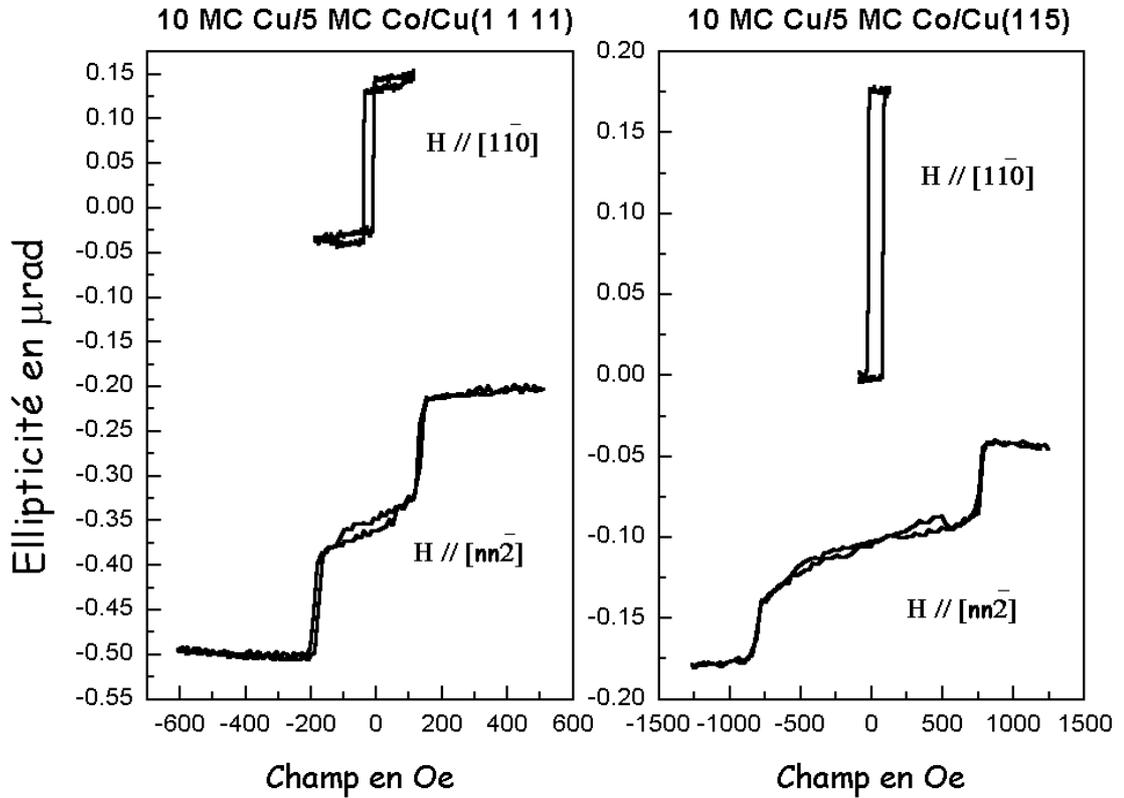


FIG. 6.13: Cycles Kerr obtenus selon $[1\bar{1}0]$ et $[nn\bar{2}]$ sur des films de cobalt de 5 MC recouvert par 10 MC de cuivre. Ces cycles ont été réalisés sur une expérience Kerr ex-situ.

$[1\bar{1}0]$ devient difficile tandis que la direction perpendiculaire aux bords de marches apparaît alors facile. Pour un dépôt plus important de cuivre (1,2 MC), ils retrouvent la configuration d'un film non recouvert où l'axe $[1\bar{1}0]$ est facile et $[nn\bar{2}]$ difficile. Le changement de direction de difficile aimantation (retournement de $[nn\bar{2}]$ vers $[1\bar{1}0]$) n'a donc lieu que pour les très faibles dépôts de cuivre. En regardant leurs cycles, on note que H_s est alors plus faible sur le film de cobalt recouvert que sur le film non recouvert comme sur nos cycles et ceux de Kawakami (graphes 6.13, 6.14.a et 6.14.b).

6.5 Conclusion

Les cycles Kerr obtenus sur des dépôts de cobalt réalisés sur Cu(1 1 1) et Cu(115) mettent en évidence l'anisotropie magnétique existant entre les axes $[1\bar{1}0]$ parallèle aux bords de marches et $[nn\bar{2}]$ perpendiculaire aux bords de marches. La direction $[1\bar{1}0]$ est alors un axe facile tandis que $[nn\bar{2}]$ est une direction de difficile aimantation.

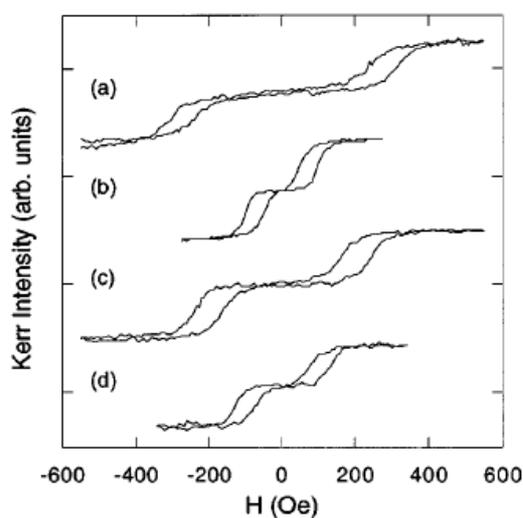


FIG. 6.14: Fig a : Cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile d'un dépôt de 8 MC de cobalt sur un substrat vicinal Cu(11n) avec un angle de coupe de $5,4^\circ$ par rapport au plan (001). Fig b : même dépôt après l'évaporation de 0,09 MC de cuivre déposé à température ambiante. Ces cycles ont été mesurés grâce au Kerr par Kawakami et al. [3]. Fig c : cycle Kerr obtenu sur un dépôt de 8 MC de cobalt après dépôt à 90 K de 0,09 MC de cuivre. Fig d : cycle obtenu avec réchauffement de l'échantillon pendant une heure à température ambiante.

La détermination des constantes d'anisotropie biaxiale et uniaxiale issues du modèle Stoner-Wohlfarth permet d'estimer quantitativement cette anisotropie magnétique. De cette étude, nous montrons que la constante d'anisotropie magnétique uniaxiale est plus importante sur le substrat présentant la plus grande densité de marches i.e. Cu(115). Cependant, il est difficile de conclure sur l'origine de cette anisotropie. En effet, les deux contributions principales responsables de cette anisotropie uniaxiale sont le nombre de voisins restreint des atomes situés aux bords de marches et d'éventuelles relaxations de structure du cobalt. Pour déterminer cette anisotropie, il est alors nécessaire de connaître à la fois la structure des films et leur morphologie, ce que nous ferons par la suite et une simulation de K_u permettra de déterminer l'importance relative de ces composantes de volume et de surface-interface. Les modèles de Néel et magnétoélastique vont nous permettre de simuler la constante d'anisotropie uniaxiale K_u . L'étude de films de cobalt recouvert par du cuivre montre que l'anisotropie uniaxiale y est moins marquée, ce qui signifie que l'interface cobalt-cuivre a une contribution moins anisotrope que l'interface cobalt-vide.

Bibliographie

- [1] W. Wulfhekel, S. Knappmann, H.P. Oepen, *J. Mag. Mag. Mat.* **163**, 267 (1996).
- [2] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcia-Aparicio et Z. Q. Qiu, *J. Appl. Phys.* **85**, 4955 (1999).
- [3] R. K. Kawakami, M. O. Bowen, Hyuk J. Choi, Ernesto J. Escorcia-Aparicio et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **58**, R5924 (1998).
- [4] P. Pouloupoulos, P. J. Jensen, A. Ney, J. Lindner et K. Barberschke, *Phys. Rev. B* **65**, 064431 (2002).
- [5] U. Bovensiepen, P. Pouloupoulos, W. Platow, M. Farle et K. Barberschke, *J. Mag. Mag. Mat.* **192**, L386 (1999).
- [6] Y. T. Millev, H. P. Oepen et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **57**, 5837 (1998).
- [7] Y. T. Millev, H. P. Oepen et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **57**, 5848 (1998).
- [8] L. Néel, *J. Phys. Rad.* **15**, 225 (1954).
- [9] J. A. Bland, D. Pescia et R. F. Willis, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1244 (1987).
- [10] R. A Hyman, A. Zangwill et M. D. Stiles, *Phys. Rev. B* **58**, 9276 (1998).
- [11] P. Krams, F. Lauks, R. L. Stamps, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3674 (1992).
- [12] M. Kowalewski, C. M. Schneider et B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **47**, 8748 (1993).
- [13] P. Krams, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. B* **49**, 3633 (1994).
- [14] W. Weber, C. H. Back, A. Bischof, D. Pescia et R. Allenspach, *Nature*, **374**, 790 (1995).
- [15] Z. Q. Qiu et S. D. Bader, *Surf. Sci.* **438**, 319 (1999).

Chapitre 7

Étude par STM de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115)

La microscopie à effet tunnel (STM) est un outil de choix pour étudier la morphologie des dépôts de matériau conducteur. Nos expériences de STM ont été menées en collaboration avec L. Barbier (SPCSI, CEA, Saclay). Les images STM présentées dans ce chapitre ont été réalisées à température ambiante dans une enceinte ultra-vide ayant une pression de base de 2.10^{-10} mbar. Une description de l'effet tunnel et du microscope est faite dans le paragraphe 4.4. Nous exposons dans ce chapitre les images STM obtenues sur des films de cobalt déposés sur Cu(1 1 11) et sur Cu(115) ainsi que leurs analyses. Nous présenterons dans une courte première partie les deux surfaces vicinales de cuivre, en mettant en évidence leurs singularités, puis dans un second paragraphe, nous montrerons les premiers stades de croissance du cobalt sur ces substrats à marches. La troisième et la quatrième parties seront consacrées aux dépôts de cobalt plus importants et une analyse statistique des images y sera présentée. Enfin dans une dernière partie nous mettrons en évidence l'influence d'un recuit à 100°C des films de cobalt puis nous conclurons sur l'évolution de la morphologie en fonction de l'épaisseur du dépôt de cobalt.

7.1 Description des surfaces vicinales de cuivre

Les surfaces de cuivre de type Cu(11 n) sont des vicinales ayant des terrasses d'orientation (001) séparées par des marches monoatomiques denses. La largeur régulière de ces terrasses est de $\frac{n}{2}$ distances interatomiques soit 14 Å pour Cu(1 1 11) et 6,4 Å pour Cu(115), la distance entre deux atomes consécutifs de cuivre étant de 2,55 Å. (schéma 7.1). La hauteur h d'une marche atomique est de 1,8 Å. L'angle α formé entre le plan des terrasses (001) et la surface vicinale de type (11 n) est égal à 7,32 °

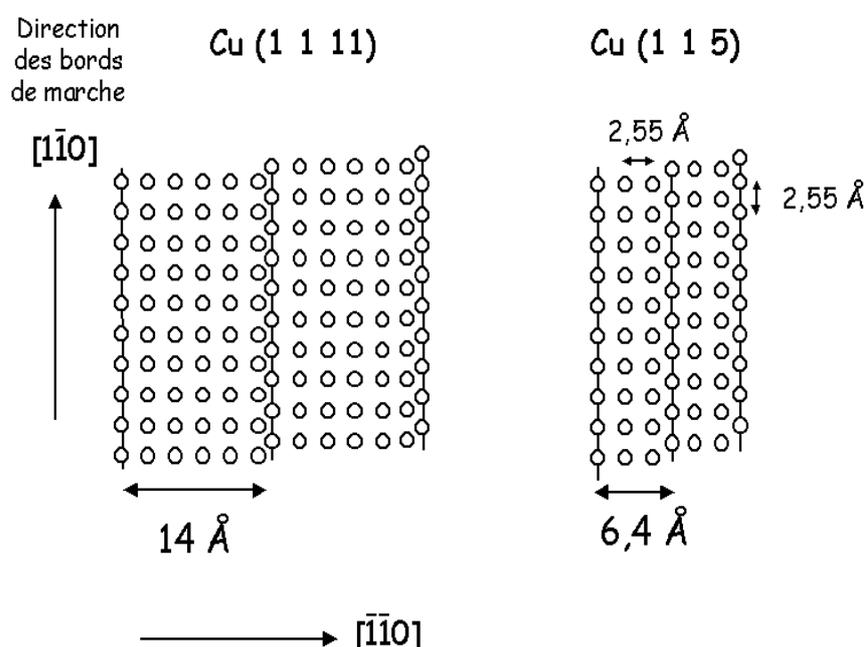


FIG. 7.1: Schéma représentant les deux surfaces vicinales de cuivre vues de dessus.

pour Cu(1 1 11) et $15,79^\circ$ pour Cu(115).

L'une des principales caractéristiques des surfaces vicinales est d'avoir une température de transition rugueuse inférieure à celle des surfaces denses. À $T = 0\text{K}$, une surface dense est parfaitement plate sans marche. Pour une température $T \neq 0\text{K}$, il se forme à la surface des défauts i.e. des lacunes et des adatoms cependant la surface moyenne reste autour de sa position observée à $T = 0\text{K}$ (figure 7.2.a). À plus haute température, la rugosité se développe à des échelles de plus en plus grande et des domaines plats de différentes hauteurs et délimités par des marches apparaissent (figure 7.2.b). Au delà d'une certaine température T_R , la fonction de corrélation des hauteurs de la surface diverge logarithmiquement avec la distance : c'est la transition rugueuse (figure 7.2.c). Ainsi les surfaces à marches peuvent être rugueuses pour des températures très inférieures à celle des surfaces denses voire à température ambiante. T_R dépend de la vicinalité ainsi $T_R(\text{Cu (1 1 11)}) = 180\text{K}$ [1] et $T_R(\text{Cu (115)}) = 380\text{K}$ [4].

7.1.1 Surface de cuivre (1 1 11)

La surface vicinale de cuivre (1 1 11) a été étudiée en détail par L. Masson et L. Barbier [1][3]. À température ambiante, cette surface de cuivre est rugueuse. Dans cette phase rugueuse, nous observons que les bords de marche présentent des crans

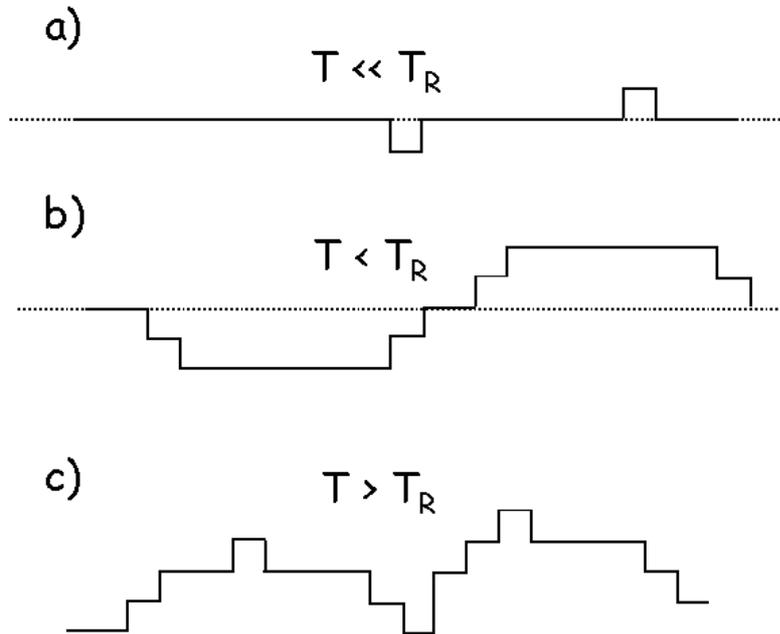


FIG. 7.2: Figures schématisant la morphologie de la surface à plusieurs températures inférieures ou supérieure à la température de transition rugueuse T_R .

positifs et négatifs répartis de manière homogène (image 7.3). A 300K, L. Masson et al. ont montré que la distance moyenne entre crans sur une surface (1 1 11) était de l'ordre de 150 Å. Des analyses temporelles d'une même région de l'échantillon [1] soulignent également qu'il existe un mouvement d'atomes de cuivre le long des marches et que les crans se déplacent à température ambiante. Le temps caractéristique de saut est de l'ordre de 2 s.

L'image STM 7.3 montre un substrat présentant des marches régulièrement espacées. Elle est représentative de la bonne qualité de notre échantillon, de plus une morphologie identique a été observée en sondant diverses zones de l'échantillon. Sur de telles images, on vérifie aisément que les largeurs de terrasses sont de 14 Å comme l'indique la distribution de largeur de terrasses tracée sur la figure 7.25 que nous commenterons par la suite.

7.1.2 Surface de cuivre (115)

La vicinale de cuivre (115) a été caractérisée par Eric Le Goff [4][5]. Cette surface à marches est, à température ambiante, non rugueuse contrairement à Cu(1 1 11). Sur cette surface, les bords de marches sont quasiment rectilignes et espacés très régulièrement (Cf. les deux traits blancs sur la figure 7.4.a). A 300K, la distance entre

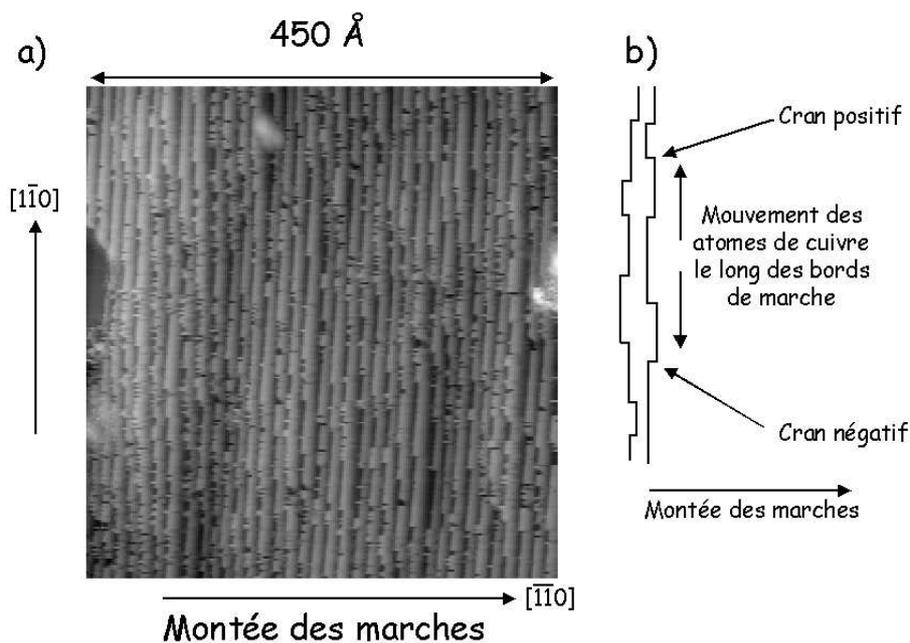


FIG. 7.3: a) Image STM $450 \times 450 \text{Å}^2$ obtenue sur une surface de cuivre (1 1 11). b) Représentation schématique des crans observés le long des bords de marche.

crans a été estimée à 630Å par E. Le Goff dans la référence [4]. Cette séparation entre défauts est environ 4 fois plus importante que celle observée sur Cu(1 1 11). Une des caractéristiques de cette surface non rugueuse est sa structure en domaines plats séparés par une ligne frontière constituée de crans élémentaires en bord de marche (figure 7.4.b). Ces domaines de hauteur moyenne différente sont imagés avec un contraste différent (gris clair et gris foncé sur la figure 7.4.a) et leur formation est schématisée sur la figure 7.4.b. Ils sont séparés par une ou plusieurs hauteurs élémentaires de $0,69 \text{Å}$. Leur taille sur la surface de Cu(115) est d'environ 500 à 1000Å . Il est à noter que la pointe de tungstène image de façon plus contrastée la limite entre deux domaines que les bords de marches alors que physiquement la hauteur entre domaines Δz_d est de $0,69 \text{Å}$ et celle entre deux marches consécutives Δz_m est de $1,73 \text{Å}$ (figure 7.4.b). Cet artefact de mesure est sans doute lié à la taille de la pointe qui ne lui permet pas de descendre dans le creux des marches. Par conséquent, il faut être prudent dans l'analyse des profils de hauteur de pointe sur cette surface.

Pour clore ce paragraphe, nous présentons sur la figure 7.5, deux dérivées d'images STM de la surface Cu(1 1 11) (image 7.5.a) et de Cu(115) (image 7.5.b). Le fait de dériver les images selon la direction $[\bar{1}\bar{1}0]$ permet d'accentuer le contraste et de faire ressortir les bords de marches. Ainsi, on observe nettement que les marches de la surface non rugueuse Cu(115) ne présentent quasiment aucun cran sur une distance

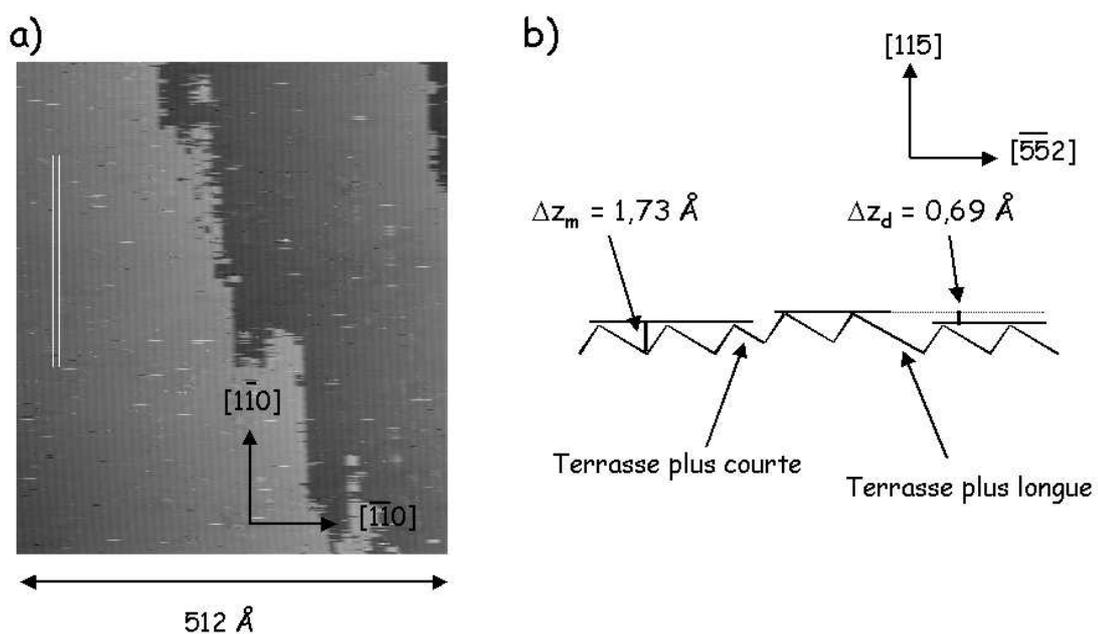


FIG. 7.4: Image STM d'une surface de cuivre (115). Les deux traits blancs permettent de visualiser deux marches consécutives. Cette surface présente deux domaines (un gris clair et l'autre gris foncé). Le schéma b) est une vue de coupe expliquant l'apparition de domaines.

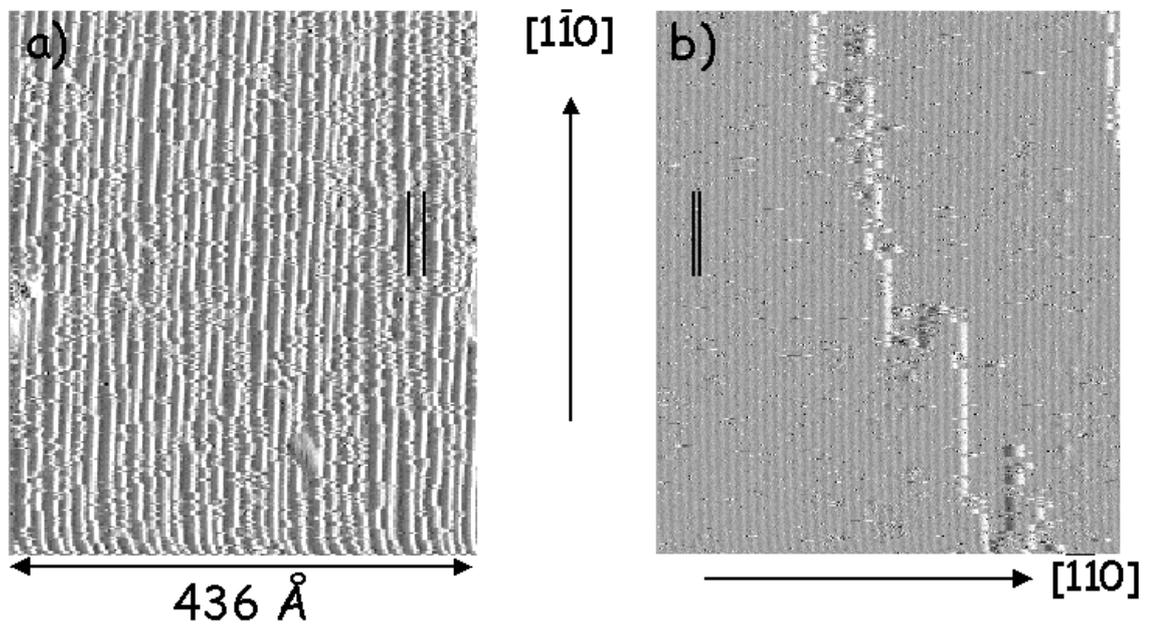


FIG. 7.5: Images STM en dérivée de Cu(1 1 1) sur figure a) et de Cu(115) sur figure b). Sur ces images, le contraste y est plus grand et permet de mettre en évidence les bords de marches plus nettement. Les traits noirs soulignent la distance de 14 Å (6,4 Å) séparant deux marches consécutives respectivement sur Cu(1 1 1) (Cu(115)).

de 512 Å contrairement à Cu(1 1 11).

7.2 Premiers stades de croissance du cobalt

Le comportement pour les faibles dépôts de cobalt diffère entre la surface de cuivre (1 1 11) et (115) (figure 7.6), ceci peut être attribué à la différence de rugosité de ces deux substrats. En effet, pour Cu(1 1 11), le dépôt de 0,01 MC de cobalt crée une forte ondulation des bords de marche (figure 7.6.d) alors que sur Cu(115), on remarque une forte augmentation du nombre de domaines (figure 7.6.b). Pour ce faible dépôt, une telle modification des surfaces Cu(1 1 11) et Cu(115) est sans doute liée à une importante mobilité des atomes de cuivre. En effet, si le substrat restait figé lors du dépôt et que le cobalt se déposait couche par couche, une évaporation de 0,01 MC représenterait une couverture de 1% de la surface. Or il est évident que sur les images 7.6.d et 7.6.b, bien plus de 1% de la surface a été modifiée et que par conséquent, le dépôt de cobalt engendre une importante réorganisation du substrat. De plus une telle morphologie ne peut pas non plus être expliquée par une simple inclusion des atomes de cobalt dans le cuivre comme cela a été montré sur des dépôts de cobalt sur Cu(001) [6] [7]. En effet, un échange entre les atomes de l'adsorbat et du substrat produirait une morphologie identique à une croissance couche par couche et seulement 1% de la surface serait modifiée.

En changeant la tension entre la pointe et la surface, il est possible de sonder des états électroniques différents et alors éventuellement de distinguer des atomes de natures différentes. Or en modifiant ce paramètre de mesure, nous n'avons pas obtenu un contraste permettant de distinguer le cobalt du cuivre. Ainsi la microscopie à effet tunnel ne permet pas, dans notre cas, de contrôler le nombre d'atomes de cobalt évaporés.

La quantité d'adsorbat de cobalt déposée a pu être vérifiée sur une large terrasse présente sur Cu(1 1 11). Nous montrons en mesurant la proportion d'îlots après évaporation que le dépôt est bien de l'ordre de 0,01 MC (Annexe A).

La différence de comportement pour des dépôts de cobalt d'épaisseur similaire sur Cu(1 1 11) et Cu(115) est intimement liée aux propriétés de rugosité des deux surfaces. Nous allons donc interpréter ces images obtenues pour les premiers stades de croissance en utilisant les caractéristiques des surfaces rugueuses et non rugueuses.

7.2.1 Interprétation de la morphologie de 0,01 MC Co/Cu(1 1 11)

L'image 7.6.d montre l'apparition de crans importants qui "tordent" les marches dans une direction privilégiée. En partant du bas de l'image, les crans sont orientés

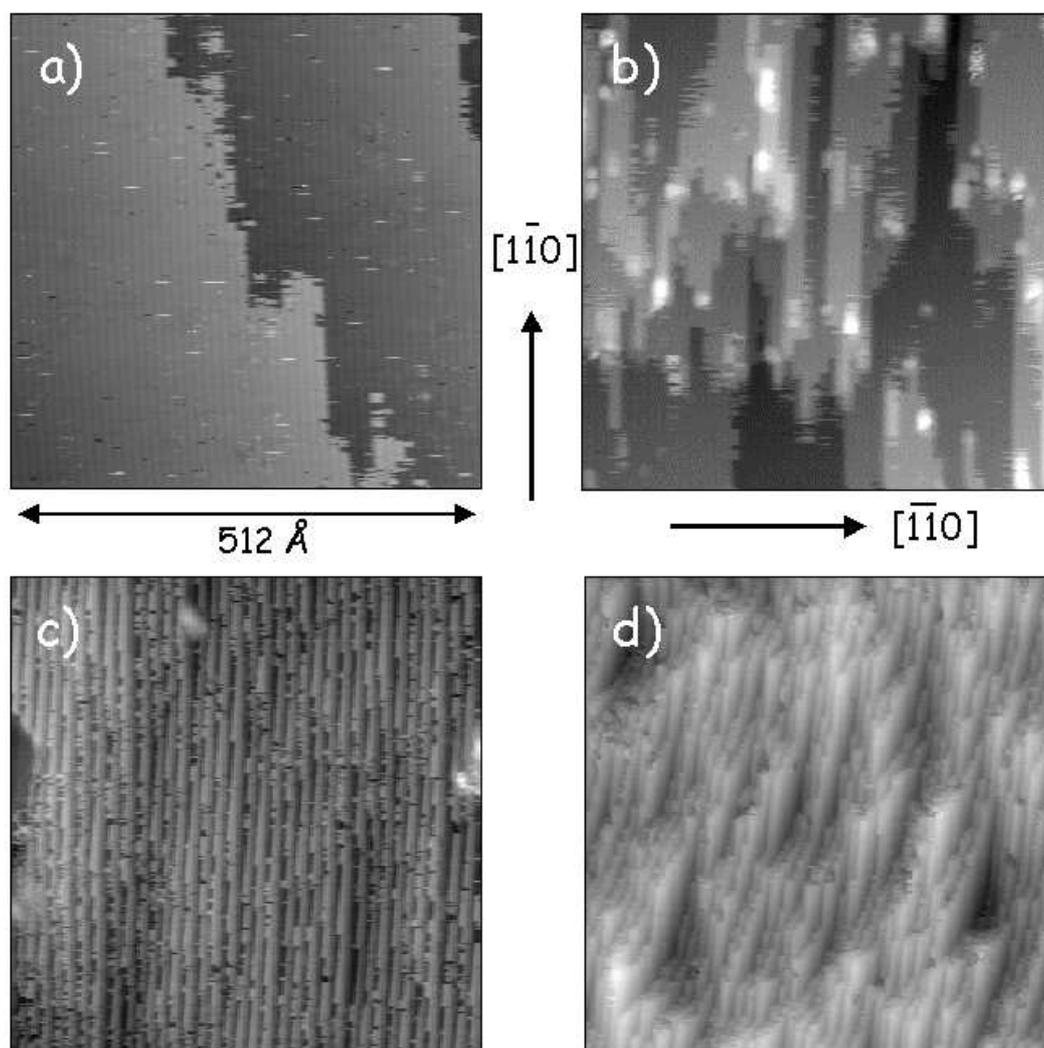


FIG. 7.6: Images STM des surfaces vicinales de cuivre (115) (a) et (1 1 1) (c) et des premiers stades de croissance de cobalt après le dépôt de 0,01 MC sur Cu(115) (b) et sur Cu(1 1 1) (d).

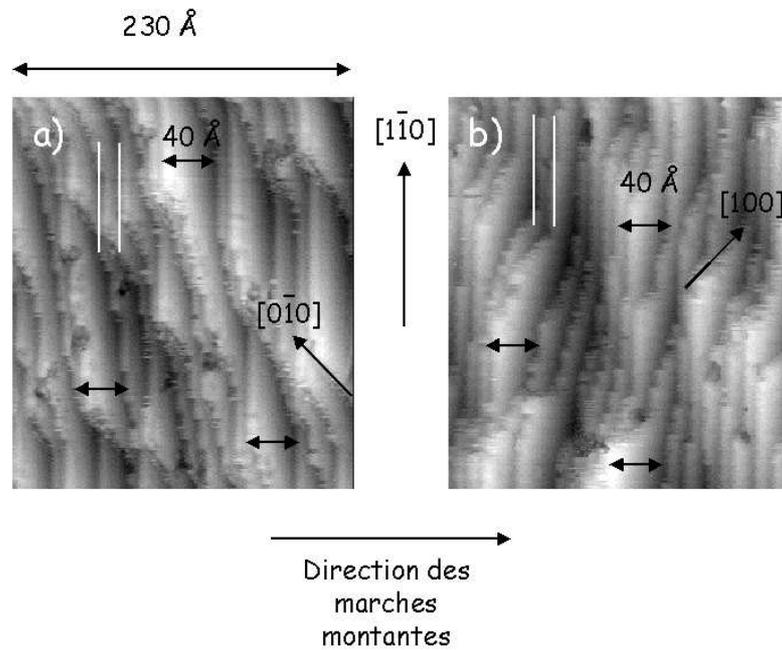


FIG. 7.7: Images STM obtenues à deux endroits différents sur un même échantillon pour une épaisseur de 0,01 MC de cobalt sur Cu(1 1 11).

vers la direction des marches montantes $[1\bar{1}0]$. En se déplaçant sur l'échantillon, nous rencontrons d'autres zones où les crans sont majoritairement orientés dans l'autre sens (figure 7.7). Les zones de balayage de ces deux images (figure 7.7) sont distantes d'environ un millimètre. On remarque que ces bords de marches crantés sont selon des axes bien définis qui sont les directions $[100]$ ou $[0\bar{1}0]$. Deux dépôts successifs de 0,01 MC de cobalt identiques ont été réalisés et les images obtenues sont similaires ce qui montre la reproductibilité de la morphologie pour un dépôt donné. Sur les différentes images effectuées sur la surface de cuivre (1 1 11) nue, aucune déviation des marches de ce type n'a été observée (figure 7.8.a).

La surface Cu(1 1 11) nue possède une symétrie d'ordre deux, tandis que les images après le dépôt de 0,01 MC montrent une asymétrie (déviation systématique des marches dans une direction) et un facettage local selon la direction dense $[1\bar{1}0]$ et selon $[100]$ et $[0\bar{1}0]$ (figures 7.7.a et 7.7.b). Une des causes pouvant générer une telle dissymétrie peut être une inhomogénéité du dépôt. Or la zone d'évaporation est de l'ordre d'un centimètre carré, ainsi nous pouvons penser que le dépôt est homogène à l'échelle de l'image STM (au maximum $2000 \times 2000 \text{ \AA}^2$) ce qui permet d'exclure cette hypothèse.

L'énergie de surface du cobalt est plus grande que celle du cuivre ($\gamma_{Co} = 2550$

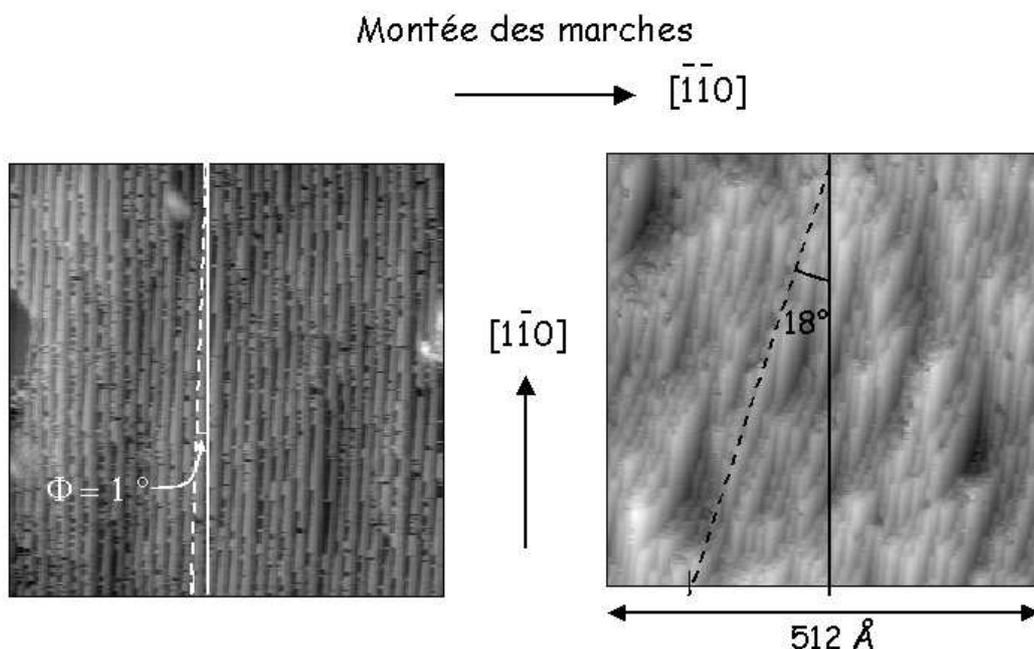


FIG. 7.8: Mesure de la désorientation des marches avant et après le dépôt de 0,01 MC de cobalt sur Cu(1 1 1).

$\text{mJ}\cdot\text{m}^{-2}$ et $\gamma_{Cu} = 1850 \text{ mJ}\cdot\text{m}^{-2}$). Le principal moteur de l'évolution de la morphologie peut donc être de réduire l'énergie de surface, le cuivre entourant et recouvrant les atomes de cobalt. Avec ces hypothèses, nous aurions des dépôts ayant une symétrie similaire au schéma 7.9.b. Le cobalt aurait comme effet d'amplifier les crans observés le long des marches. Or la forme des crans est plutôt asymétrique par rapport à la direction $[\bar{1}\bar{1}0]$.

Une hypothèse est d'envisager une variation locale (ϕ) de l'azimut de l'angle de coupe due à la préparation du substrat de cuivre (schéma 7.10.a). Ainsi ceci générerait une certaine densité de crans tous orientés dans le même sens. Un facettage est alors possible par accumulation des crans pendant l'évaporation (figure 7.10.b). Si la morphologie était uniquement causée par un défaut de coupe local, à l'échelle de l'image, cet angle ϕ devrait être conservé comme sur l'exemple de la figure 7.10.a et 7.10.b. Or, nous remarquons qu'expérimentalement l'angle de déviation des bords de marches est plus important après le dépôt que sur le substrat de cuivre nu (figure 7.8). Les marches sont donc probablement déstabilisées par le cobalt sur des échelles supérieures à la taille des images STM (figure 7.11). Ainsi la déviation observée sur l'image 7.7.a doit nécessairement être compensée quelque part (image 7.7.b).

La morphologie des dépôts (figures 7.7) montre par conséquent qu'un grand nombre

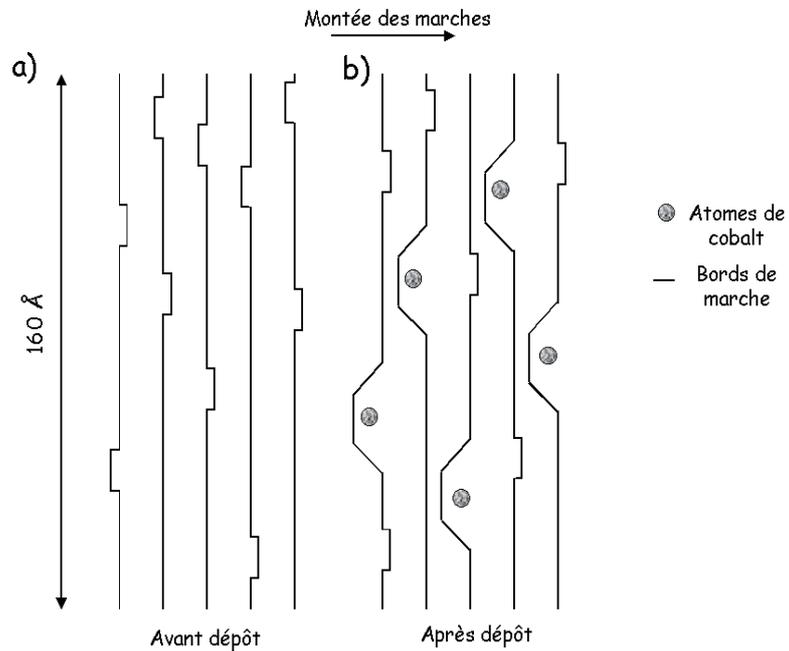


FIG. 7.9: Figure a : schéma de la surface de Cu(1 1 11) rugueuse. Figure b : simulation d'un dépôt de 0,01 MC de cobalt sur une surface de cuivre (1 1 11).

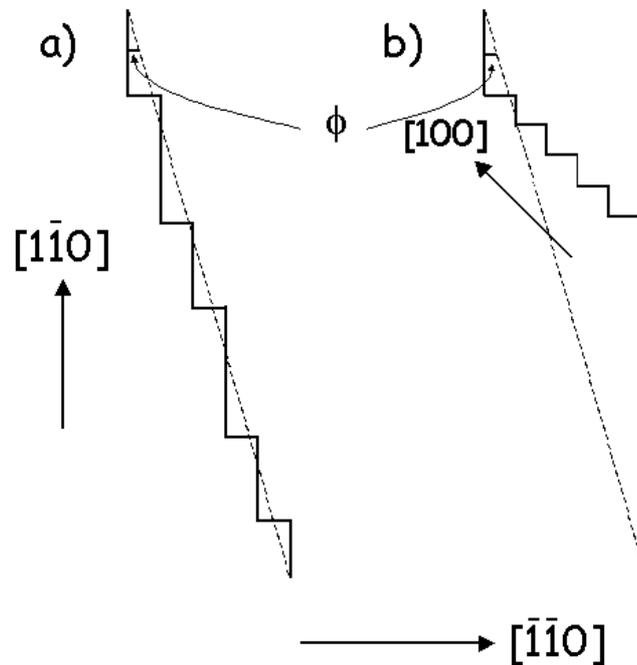


FIG. 7.10: Schéma simulant le facettage $[1\bar{1}0]$ et $[100]$ par regroupement des crans à partir d'une surface vicinale présentant avant dépôt un défaut local de coupe ϕ . figure a : avant évaporation, figure b après dépôt.

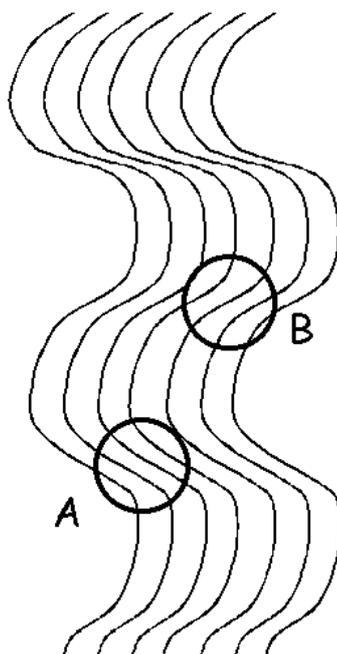


FIG. 7.11: Schéma de l'ondulation éventuelle des marches à grande échelle. L'image 7.7.a a sans doute été imagée dans une zone de type A tandis que 7.7.b dans la région B.

d'atomes de cuivre s'est déplacé au début de la croissance. De plus le temps caractéristique de déplacement d'un cran le long d'une marche sur Cu(1 1 11) sans cobalt est de l'ordre de deux secondes [2]. Il est alors surprenant de constituer un si fort déplacement de matière en quelques minutes après le dépôt de 0,01 MC de cobalt (l'évaporation durant 1s). Cependant, dans le cas d'une adsorption forte (chimisorption) sur Cu(1 1 11), telle que celle observée avec le soufre pour un taux de couverture de 2 % à température ambiante, L. Masson et al. [8] ont également observé une augmentation de la rugosité des marches. Dans le cas de l'évaporation de palladium sur une surface de cuivre (1 1 11), un déplacement de matière suffisant est observé par S. Goapper et al. [9] pour former des marches doubles à une température de 320 K légèrement supérieure à la température ambiante.

La présence de larges crans au début de la croissance a également déjà été observée sur d'autres systèmes. Giesen et al. ont montré la présence d'ondulations des marches sur Co/Cu(1 1 17) par STM. De même, F. Dulot et al. ont mis en évidence par STM, dans le cas du dépôt de fer sur Cu(001), la modification des marches résiduelles de cuivre au début de la croissance du fer [11][12]. Ils interprètent la formation de crans, qui sont dans leur cas symétriques, par une relaxation des contraintes du cuivre induite par le fer. Leur système présente des inclusions de fer dans le substrat qui

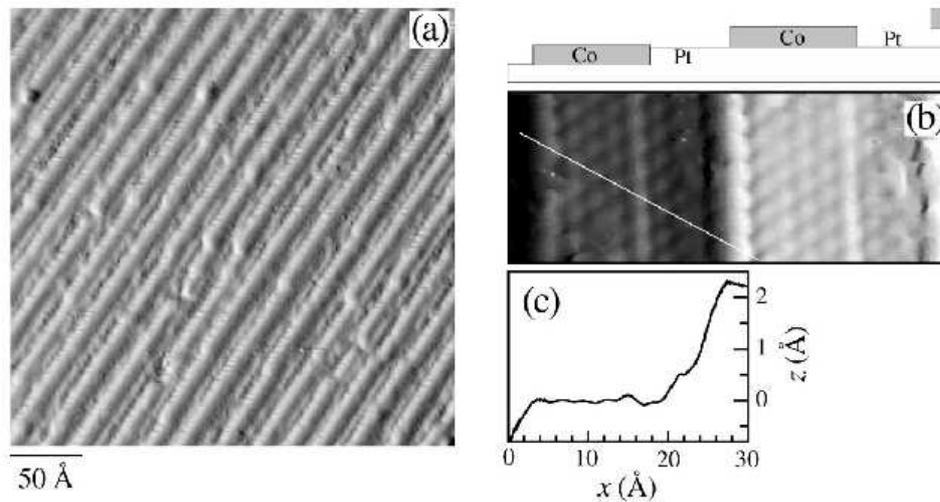


FIG. 7.12: Figure a) : dérivée d'une image STM obtenue par Gambardella et al. sur 0,6 MC de Co/Pt(997) déposé à 250 K. L'encart b) est un zoom sur deux terrasses adjacentes. Le graphe c) est le profil de hauteur de pointe le long de la ligne blanche représentée sur b. Ce type de substrat reste figé lors de l'évaporation de cobalt.

créent localement des contraintes dans le cuivre. Ces contraintes peuvent être relaxées par la présence des crans. En effet, au niveau d'un cran, le cuivre a un nombre restreint de voisins et il lui est alors plus facile de relâcher ses contraintes.

La formation des crans dépend donc fortement de la mobilité des atomes du substrat et des énergies de surface relative du substrat et de l'adsorbat. Ainsi pour des dépôts de cobalt sur un substrat de platine à marches Pt(997), Gambardella et al. montrent contrairement à Co/Cu(11n), que le cobalt forme des chaînes d'atomes le long des bords de marches du platine (figure 7.12). Dans cet exemple, le substrat reste figé lors de l'évaporation du cobalt [10], l'énergie de surface du platine étant proche de celle de l'adsorbat tandis que dans l'exemple de Co/Cu le substrat possède une énergie de surface nettement inférieure à celle de l'adsorbat, situation identique à celle observée pour Pd/Cu ($\gamma_{Pd} = 2050 \text{ mJ.m}^{-2}$, $\gamma_{Pt} = 2475 \text{ mJ.m}^{-2}$, $\gamma_{Co} = 2550 \text{ mJ.m}^{-2}$ et $\gamma_{Cu} = 1825 \text{ mJ.m}^{-2}$) [13].

7.2.2 Interprétation de la morphologie de 0,01 MC Co/Cu(115)

Pour Cu(115), le dépôt de 0,01 MC crée une forte augmentation du nombre de domaines (figure 7.6.b) ayant une largeur comprise entre 50 et 100 Å dans la direction [110], cette taille de domaines est environ 10 fois plus petite que celle observée sur la surface nue de Cu(115). Le fait que la surface s'organise encore avec des domaines,

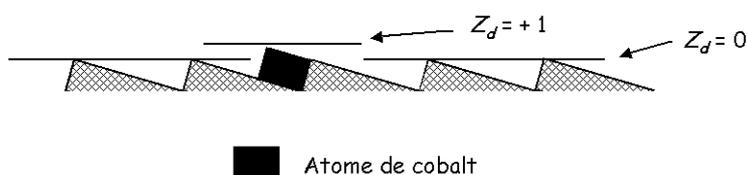


FIG. 7.13: Schéma mettant en évidence que le dépôt d'un atome de cobalt génère un petit domaine plus élevé que la surface initiale de cuivre.

montre qu'en présence d'une faible quantité de cobalt la surface est encore non rugueuse. En effet, le dépôt d'atomes de cobalt peut être considéré comme un défaut. Si on suppose que le cobalt se dépose dans le creux de la marche, il crée localement une terrasse plus longue alors que la terrasse inférieure est elle plus courte i.e. un petit domaine plus élevé que la surface initiale avant dépôt (schéma 7.13). La figure 7.6.b montre que ces défauts sont regroupés pour former des domaines.

Nous avons représenté sur la figure 7.14, un des mécanismes possibles de formation de domaines pour un dépôt de 0,01 MC de cobalt sur une surface de cuivre ne présentant pas de domaine initialement. Dans ce cas, pour obtenir des domaines d'une largeur de 70 Å, tels que ceux observés expérimentalement, les marches de cuivre doivent localement avancer d'un cran atomique dans la direction [110] sur une distance de 70 Å tandis qu'elles doivent reculer d'un cran sur une autre zone de l'échantillon. En effet, afin de conserver un nombre d'atomes de cuivre constant, la formation d'un domaine plus élevé ($Z_d = +1$) s'accompagne de la création d'un autre domaine d'altitude $Z_d = -1$ par rapport à la surface initiale de cuivre pour laquelle $Z_d = 0$. Avec de telles hypothèses, le dépôt de 0,01 MC (soit un taux de couverture de 1% de la surface) met en mouvement 7% atomes de cuivre de la surface. Si l'on compare les schémas 7.14.a et 7.14.b respectivement avant et après le dépôt, l'aire de l'échantillon modifiée correspond à la somme des surfaces des deux domaines ($Z_d = +1$ et $Z_d = -1$) qui est égale à 40%. Il est à noter que ces domaines sont principalement constitués de cuivre. Sur le schéma 7.14.b, nous avons fait l'hypothèse que le cobalt était regroupé. Si ce n'est pas le cas et si l'adsorbat est reparti de manière aléatoire dans le domaine $Z_d = +1$, le pourcentage d'atomes de cuivre ayant bougé et celui de la surface modifiée restent les mêmes.

Etant donnée la largeur des domaines créés et si on considère que le cobalt se dépose comme l'indique le schéma 7.14.b, ce dépôt crée une perturbation sur 70 Å. Cette perturbation est sans doute véhiculée via l'interaction existant entre les marches.

Avec le dépôt d'une faible quantité de cobalt sur Cu(115), nous mettons en évidence l'importante potentialité des atomes de cuivre à bouger et à réorganiser la surface

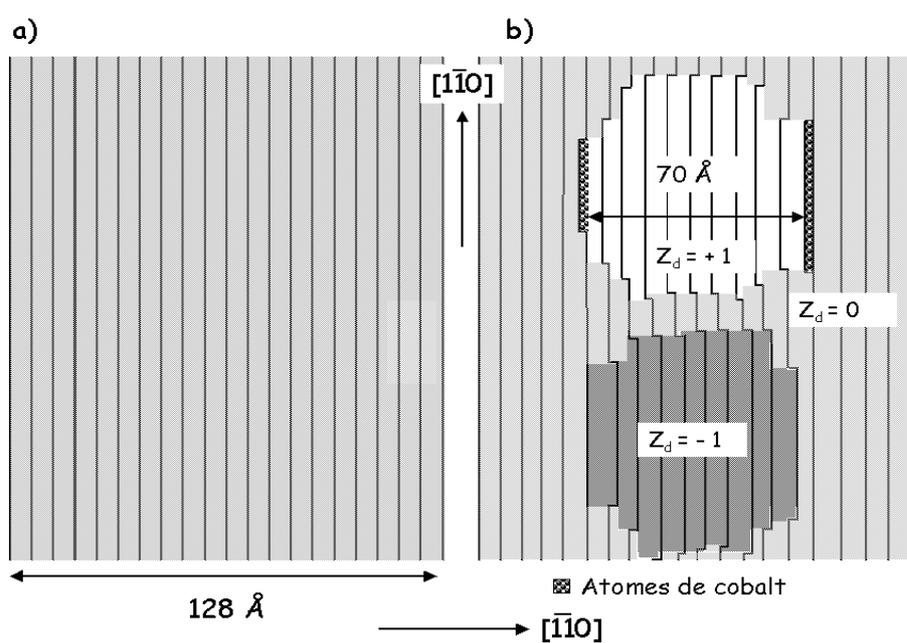


FIG. 7.14: Schéma représentant un des mécanismes possibles de la formation de domaines par évaporation de cobalt. La figure a est une surface de cuivre (115). La figure b est une surface (115) après dépôt d'environ 0,01 MC de cobalt.

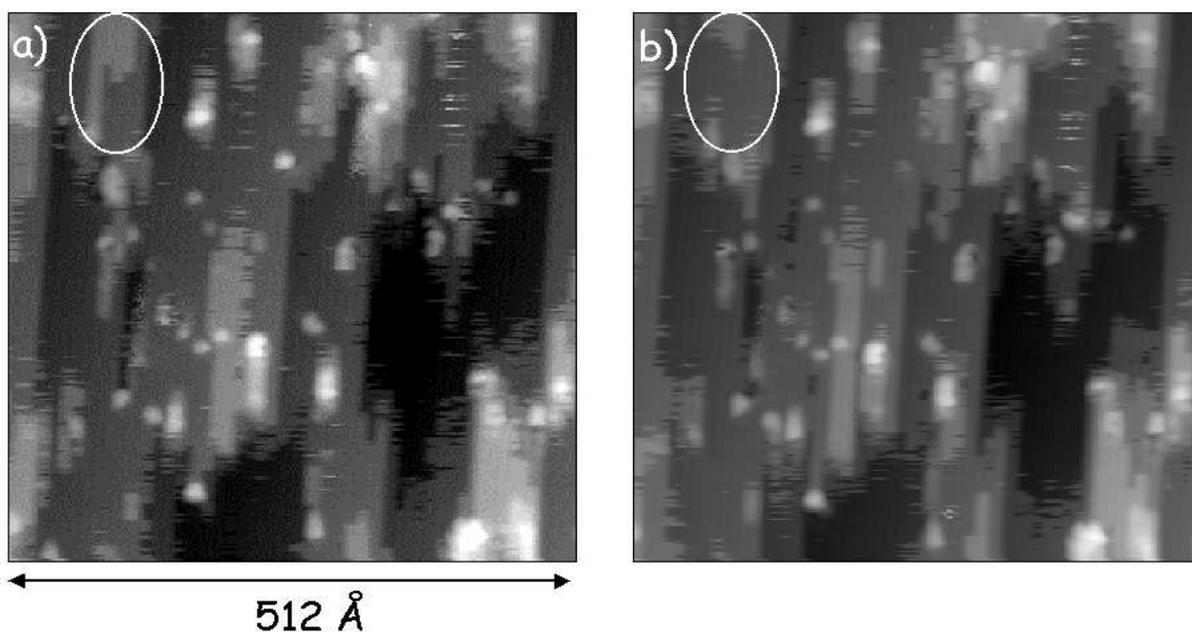


FIG. 7.15: Images STM prises à 3 minutes d'intervalle sur une même zone de l'échantillon avec 0,01 MC de cobalt sur Cu(115). On note la forte mobilité des atomes de cuivre autour des petits domaines. Le cercle blanc indique une même zone de l'échantillon dans laquelle un domaine s'est modifié durant une période de quelques minutes.

à température ambiante. Cette mobilité des atomes du substrat est également mise en évidence sur les images STM 7.15 enregistrées successivement à quelques minutes d'intervalle sur une même zone de l'échantillon. Sur ces images 7.15.a et 7.15.b, le mouvement du cuivre est observé au niveau des petits domaines.

7.2.3 Conclusion

Du fait de la proximité dans le tableau périodique du cobalt et du cuivre, les images STM ne permettent pas de distinguer ces deux entités chimiques. Différents scénari ont dus être formulés pour expliquer l'importante modification de la surface observée après un dépôt de 0,01 MC de cobalt sur Cu(1 1 1) et sur Cu(115), notamment la forte mobilité des atomes de cuivre sur les deux surfaces. Ces images des tous premiers stades de croissance du cobalt ont également mis en évidence le rôle des interactions entre marches qui forcent les terrasses à onduler en phase sur une distance de 40 Å sur Cu(1 1 1) et de 70 Å sur Cu(115). Elles montrent qu'une infime quantité de cobalt (0,01 MC) arrive à déstabiliser l'équilibre de la surface de cuivre de manière impressionnante.

7.3 Dépôt de 1 MC de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115)

La surface observée sur un dépôt d'une monocouche de cobalt sur Cu(1 1 11) ou sur Cu(115) semble dans les deux cas très perturbée (figure 7.17). Les réseaux de marches sont quasiment détruits. Les profils de hauteur de pointe (schémas 7.16 et 7.19) le long de la direction $[\bar{1}\bar{1}0]$ montre de très grandes variations comparées à celles obtenues sur les substrats de cuivre nus. Étant donnée l'amplitude des mouvements verticaux qu'elle doit effectuer, la pointe de tungstène a alors du mal à se stabiliser entre deux mesures ce qui génère des images assez bruyantes.

Puisque que le réseau de marche est complètement détruit aussi bien sur Cu(1 1 11) que sur Cu(1 1 5), on peut alors facilement affirmer que premièrement le mode de croissance n'est pas couche par couche sinon l'adsorbat reproduirait la vicinalité initiale du substrat et que deuxièmement les atomes de cuivre sont très mobiles. La mobilité des atomes du substrat est par conséquent un moteur puissant déstabilisant la surface.

7.3.1 1,2 MC de cobalt sur Cu (1 1 11)

Sur les figures 7.17.a et 7.18 pour 1,8 MC, il est difficile de suivre les marches sur toute la grandeur de l'image STM i.e. sur 512 Å. Les bords de marches sont fortement ondulés et les tronçons que l'on peut suivre s'étendent sur une distance comprise entre 40 et 100 Å avec une distribution de largeur de terrasse centrée à environ 40 Å ce qui correspond à 3 terrasses initiales de cuivre (figure 7.17.a). Ainsi afin de conserver l'orientation (1 1 11) de la surface, les hauteurs de marches doivent être de trois hauteurs atomiques ce qui est vérifié sur le profil de hauteur de pointe (schéma 7.16). Étant donnée la hauteur des îlots (environ 3 MC), ces derniers sont alors principalement constitués de cuivre et on peut ainsi conclure que la présence des marches favorise l'interdiffusion du cobalt avec le cuivre au moins sur 3 MC alors que sur une surface plane l'interdiffusion est limitée à une monocouche [6][7].

7.3.2 1 MC de cobalt sur Cu(115)

La morphologie du dépôt d'une monocouche de cobalt sur Cu(115) est constituée d'îlots. Le réseau de marches est totalement détruit et les profils indiquent de grandes variations de hauteur de pointe (figure 7.19). Il est difficile d'extraire précisément des distances caractéristiques de grosseurs d'îlots car la dispersion en taille semble large. Cependant, à première vue, on peut estimer que la longueur des îlots (dans la direction $[1\bar{1}0]$) est de l'ordre de 60 à 70 Å et que leur largeur dans la direction $[\bar{1}\bar{1}0]$ est d'environ 30 à 40 Å ce qui correspond à 5 terrasses initiales. Cette largeur d'îlots

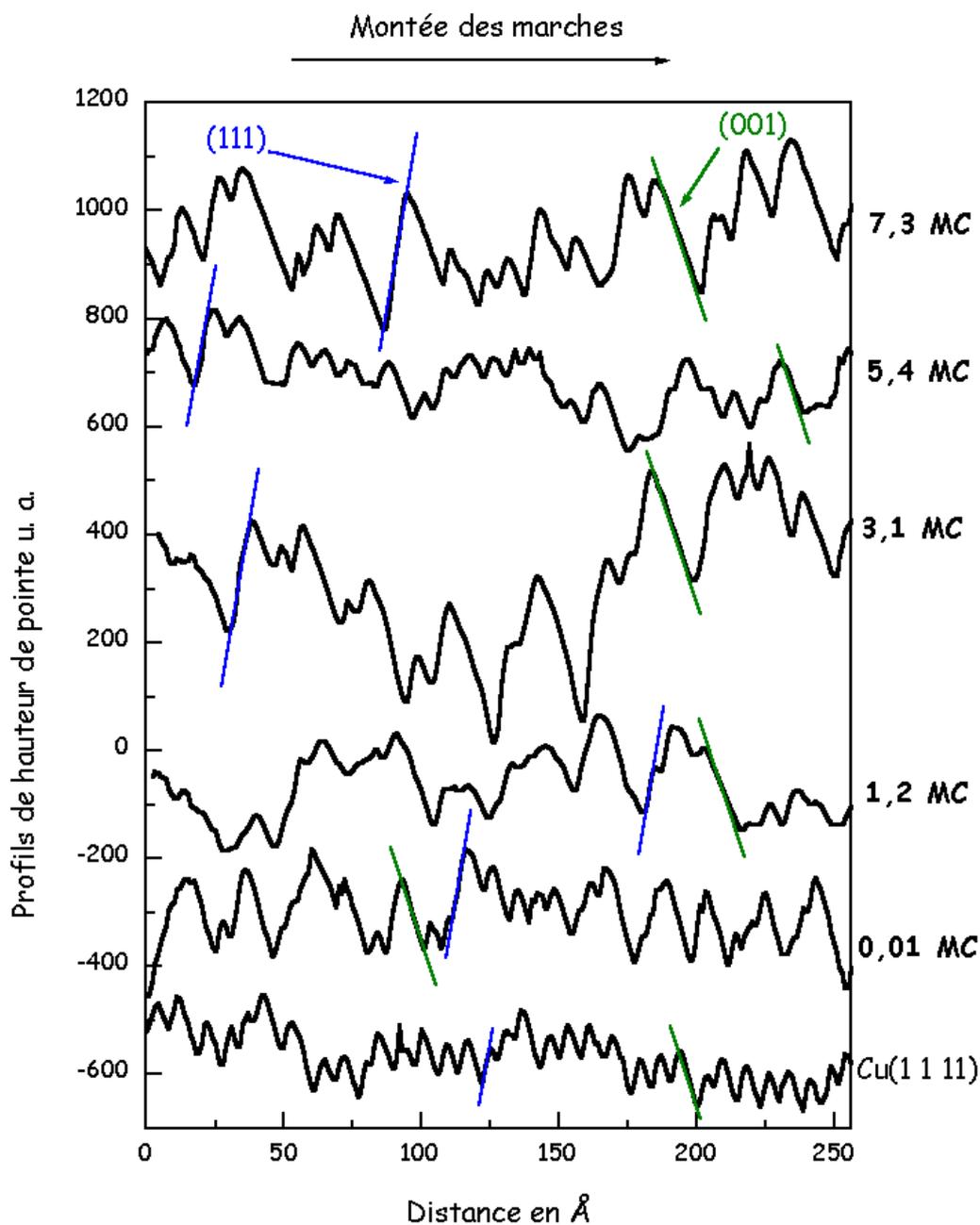


FIG. 7.16: Profils de hauteur de pointe obtenus sur des films de cobalt de plusieurs épaisseurs déposés sur Cu(1 1 1). La montée des marches se fait selon le plan (111) et les terrasses sont d'orientation (001).

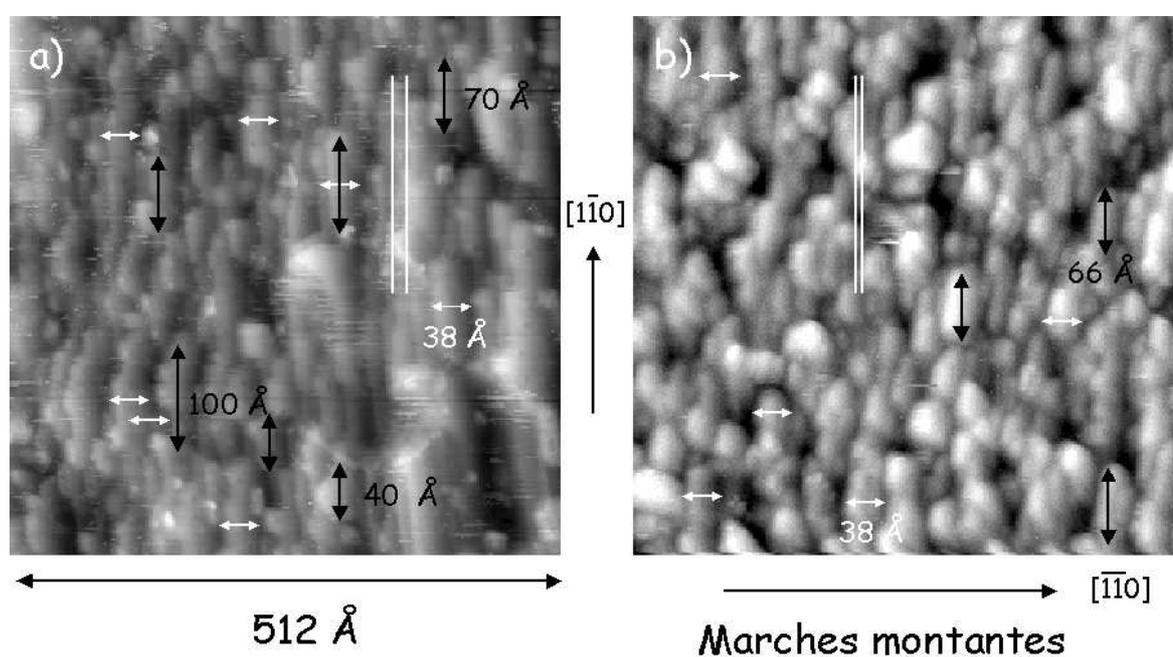


FIG. 7.17: Images STM ($512\text{\AA} \times 512\text{\AA}$) obtenues pour un dépôt de 1 MC sur Cu(1 1 11) (fig a) et sur Cu(115) (fig b). Les flèches indiquent des distances caractéristiques. Les deux traits blancs donnent l'espacement initial sur le substrat de cuivre de deux marches consécutives. La direction horizontale correspond à l'axe $[1\bar{1}0]$ et celle verticale à la direction initiale des bords de marches i.e. à $[1\bar{1}0]$.

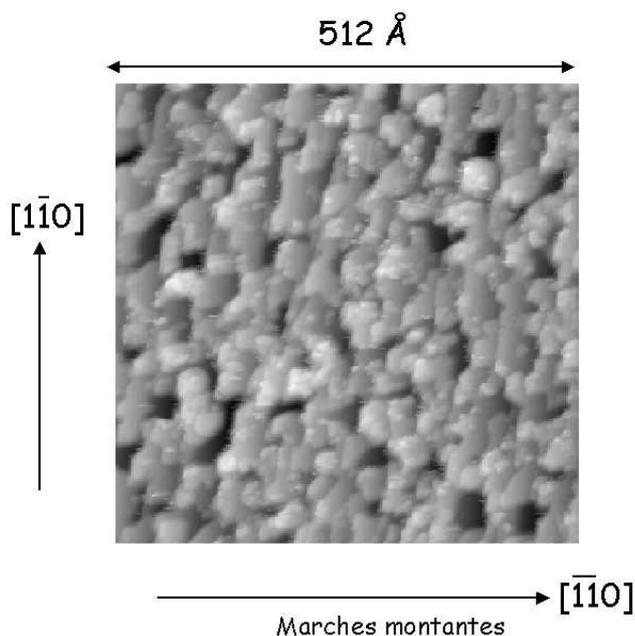


FIG. 7.18: Image STM obtenue sur un dépôt de 1,8 MC de cobalt déposé sur Cu(1 1 11).

est similaire à celle observée sur le substrat Cu(1 1 11). Pour préserver l'orientation (115) de la surface, la hauteur des îlots doit être de 5 hauteurs atomiques (figure 7.19). Ceci montre, comme pour Cu(1 1 11), que pour cette épaisseur, les îlots doivent être constitués à la fois de cobalt et de cuivre.

7.3.3 Conclusion

De toute évidence, ces images STM obtenues sur les dépôts d'une monocouche montrent la quasi destruction du réseau de marches aussi bien sur Cu(1 1 11) que sur Cu(1 1 5). Ceci confirme la forte mobilité du cuivre même pour cette épaisseur. La figure 7.20 présente des clichés de diffraction d'électrons lents (DEL). Sur la colonne de gauche sont représentés des clichés DEL de substrats à marche sans cobalt. Les taches y sont dédoublées en raison de la vicinalité des substrats (paragraphe 4.5.3). La colonne de droite regroupe des clichés obtenus après évaporation d'une monocouche de cobalt. L'énergie des électrons incidents est la même pour le substrat avec ou sans cobalt. On note que dans le cas des substrats de cuivre (Cu(1 1 11) et Cu(115)), le dédoublement des taches disparaît après l'évaporation de 1 MC de cobalt, ce qui est en accord avec les images STM 7.17 qui montrent la destruction du réseau de marches. Les clichés alors obtenus sont comparables à ceux réalisés sur une surface de cuivre d'orientation

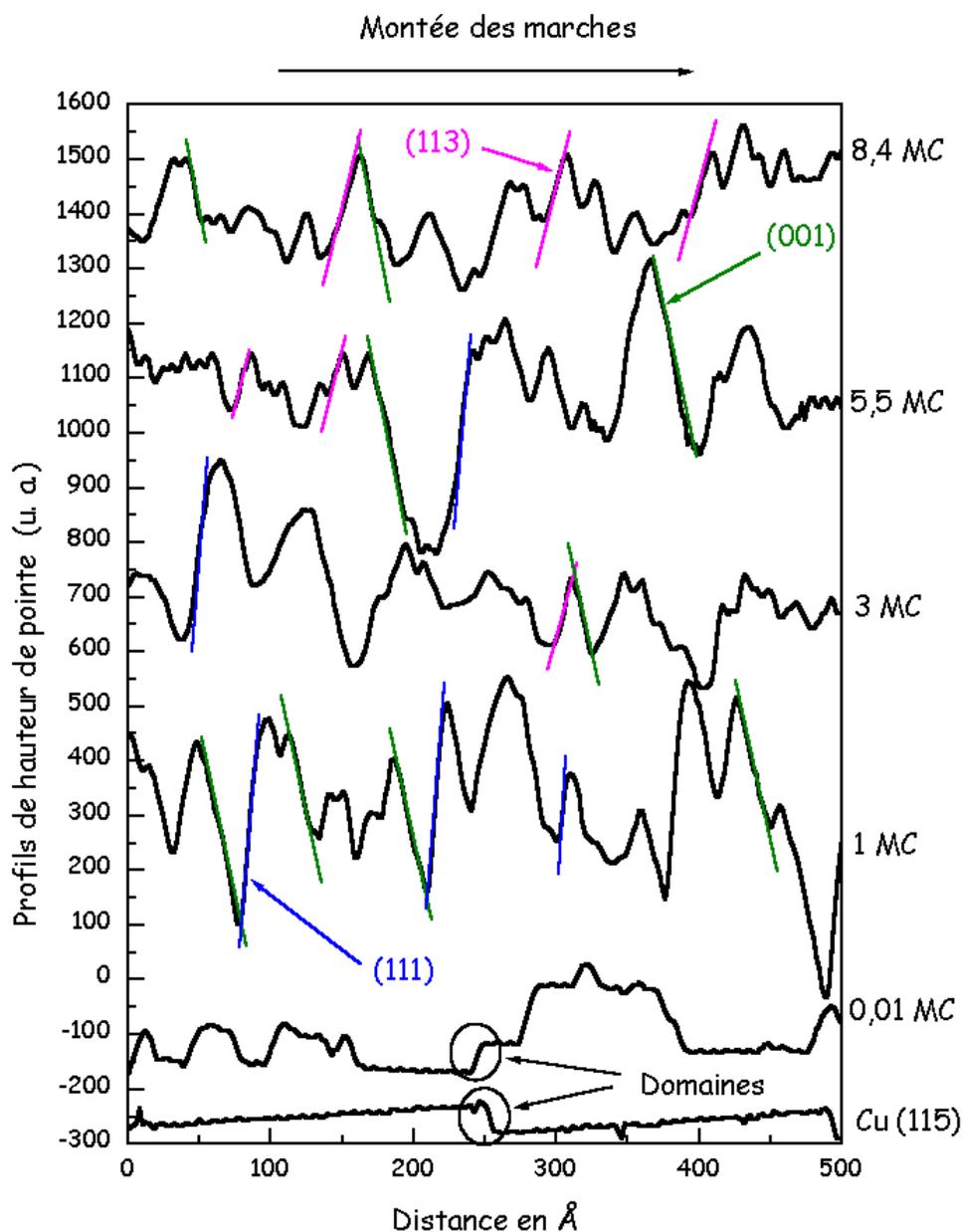


FIG. 7.19: Profils de hauteur de pointe obtenus sur des films de cobalt de plusieurs épaisseurs déposés sur Cu(115). La montée des marches se fait selon les plans (111) ou (113) selon l'épaisseur et les terrasses sont toujours d'orientation (001).

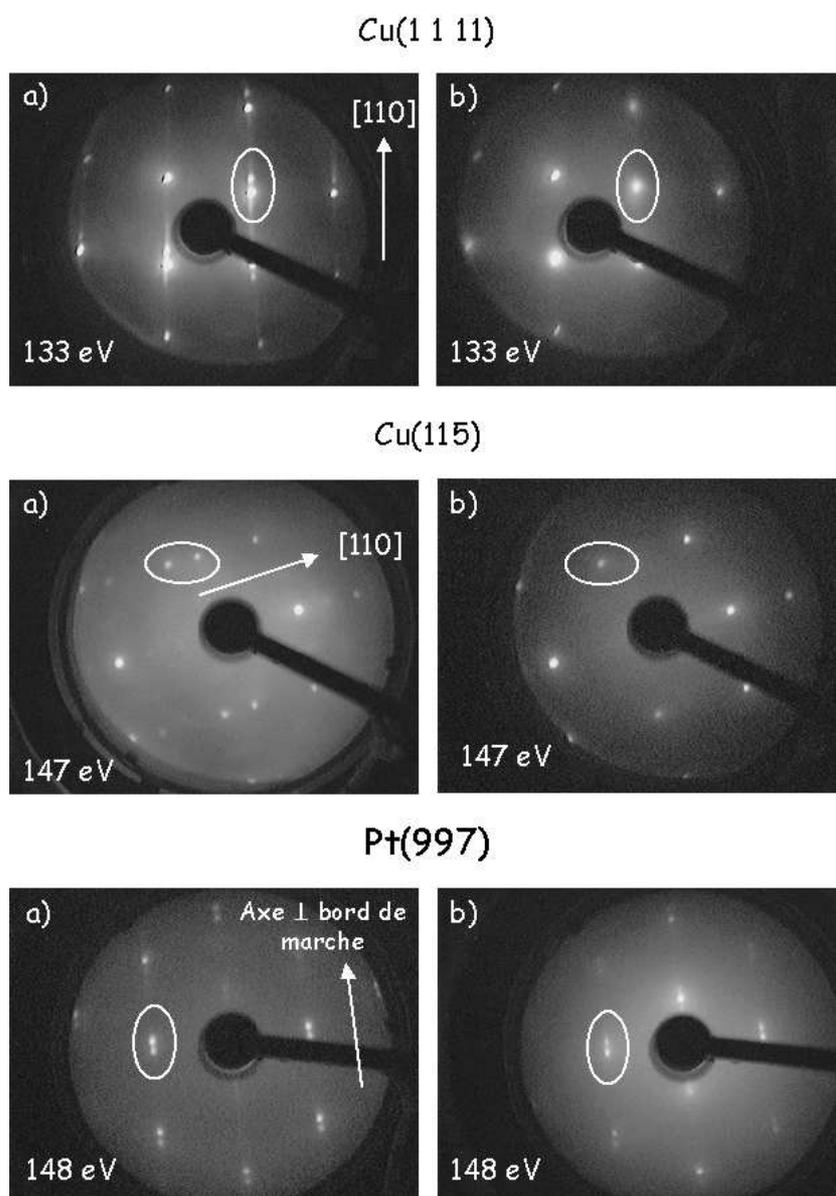


FIG. 7.20: Clichés de DEL obtenus sur des substrats de cuivre Cu(1 1 1), Cu(115) et de platine Pt(997) sans cobalt (colonne de gauche) et avec une monocouche de cobalt (colonne de droite).

(001) (figure 4.20). Ceci indique donc que la surface du dépôt qui est composée de cobalt et de cuivre reste cristallographiquement ordonnée. Pour le substrat de platine (Pt(997)), les taches conservent leur dédoublement, on en déduit donc que le dépôt d'une monocouche de cobalt sur Pt(997) ne détruit pas le réseau de marches comme ce qui est observé sur l'image STM (figure 7.12) réalisée par Gambardella et al. [10]. La diffraction d'électrons lents confirme aussi à plus grande échelle ce qui est localement observé en STM.

Étant donnée la hauteur des marches observée sur les profils de hauteur de pointe, (3 MC pour Cu(1 1 11) et 5 MC sur Cu(115)) et puisque la densité d'îlots est quasiment la même sur les deux substrats, nous en déduisons que les îlots sont constitués de cobalt et de cuivre et que la distance d'interdiffusion est d'environ 3 MC pour le dépôt sur Cu(1 1 11) et de 5 MC sur Cu(1 1 5). Sur un substrat de cuivre plat (001), cette interdiffusion n'existe que sur la première monocouche [6][7]. Nous en concluons que la présence des marches accroît d'autant plus l'interdiffusion cobalt-cuivre que les terrasses sont étroites. Ceci peut se comprendre car dans le cas d'une surface à marche, l'interdiffusion ne nécessite pas d'échange dans la direction [001] entre les atomes de cobalt et ceux du cuivre. Elle est simplement permise par un mouvement des atomes de cobalt dans le plan des terrasses le long des bords de marches (i.e. ondulation des marches).

7.4 Dépôt de 3 MC de Co/Cu(1 1 11) et Cu(115)

7.4.1 3 MC de Co/Cu(1 1 11)

Les dépôts de 3 MC de cobalt sur Cu(1 1 11) (figure 7.21.a) présentent des îlots étendus dans la direction $[1\bar{1}0]$ de 60 à 150 Å, plus allongés que ceux observés pour 1,2 MC Co/Cu(1 1 11). La largeur de ces îlots est d'environ 50 Å selon $[\bar{1}\bar{1}0]$. La surface de cet échantillon montre de grandes variations de hauteur comparables à 3 voire 5 marches monoatomiques (figure 7.16). Les montées sont suivies de grandes terrasses planes. Si l'on compare l'orientation des montées et des descentes des marches par rapport à celle du cuivre (1 1 11), on retrouve le même type de direction i.e. les faces ascendantes des îlots sont de type (111) tandis que les faces descendantes sont d'orientation (001) (figure 7.16).

7.4.2 3 MC de Co/Cu(115)

Pour ce qui concerne le dépôt de 3 MC de cobalt effectué sur Cu(115) (figure 7.21.b), les images obtenues sont beaucoup moins nettes, cependant on distingue des tailles caractéristiques d'îlots de l'ordre de 50 Å de large et de 90 Å le long de $[1\bar{1}0]$.

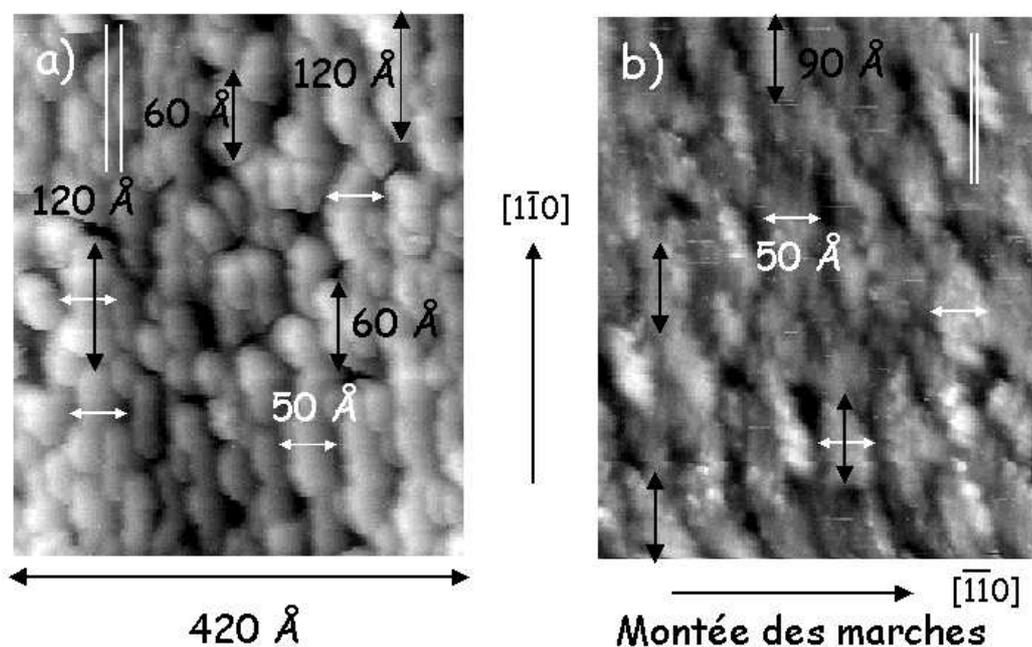


FIG. 7.21: Images STM d'un dépôt de 3 MC de cobalt sur une surface de cuivre (1 1 11) (fig a) et sur une surface Cu(115) (fig b).

Comme pour 1 MC, la taille latérale des îlots est la même que celle observée sur Cu(1 1 11). L'analyse des profils semble montrer que des marches vraisemblablement d'orientation (115) apparaissent au sommet des îlots.

7.4.3 Conclusion

Même si les marches sont totalement détruites, la surface du "film" garde cependant la mémoire de la symétrie d'ordre 2 des substrats par la forme allongée des îlots selon $[1\bar{1}0]$. De plus comme la taille caractéristique des îlots dans la direction $[110]$ est la même pour les deux substrats (50 Å), l'interdiffusion cobalt-cuivre reste ainsi plus importante pour les dépôts de cobalt sur Cu(115).

7.5 Dépôt de 5 MC de Co/Cu(1 1 11) et Cu(115)

7.5.1 5,5 MC de Co/Cu (1 1 11)

Pour les dépôts de 5,5 MC observés sur Cu(1 1 11), il y a réapparition du réseau de marches (figure 7.22.a). Sur cette image ayant une taille de $500\text{Å} \times 500\text{Å}$, il est alors possible de suivre individuellement les marches et de les numériser sur 500 Å grâce au logiciel Image Scan pro (figure 7.23). Une analyse statistique est alors possible.

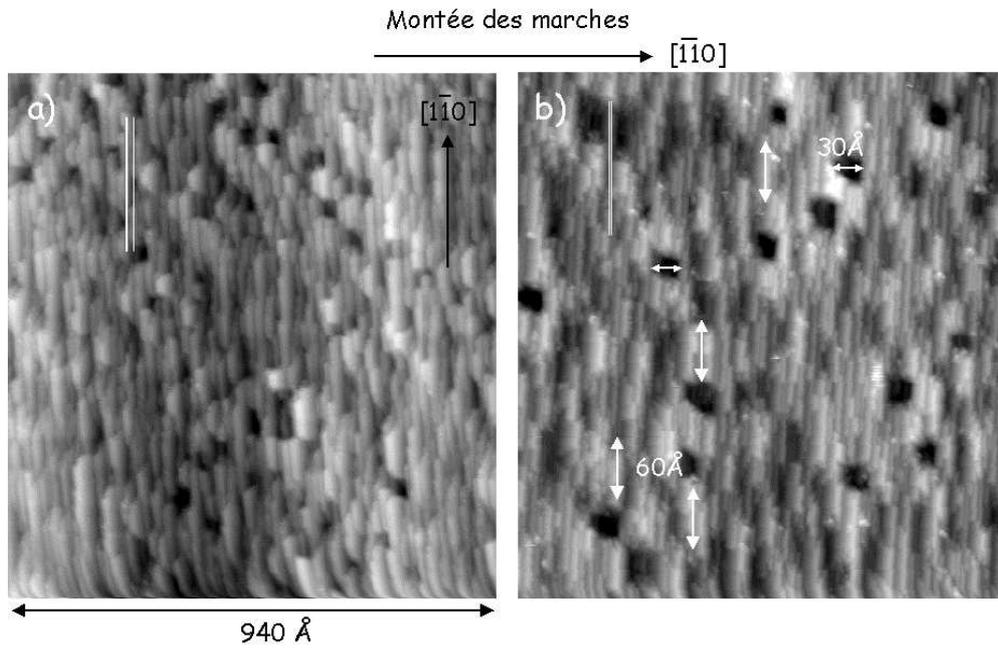


FIG. 7.22: Images STM pour des dépôts de 5 MC de Co/Cu(1 1 1) (fig a) et de Co/Cu(115) (fig b).

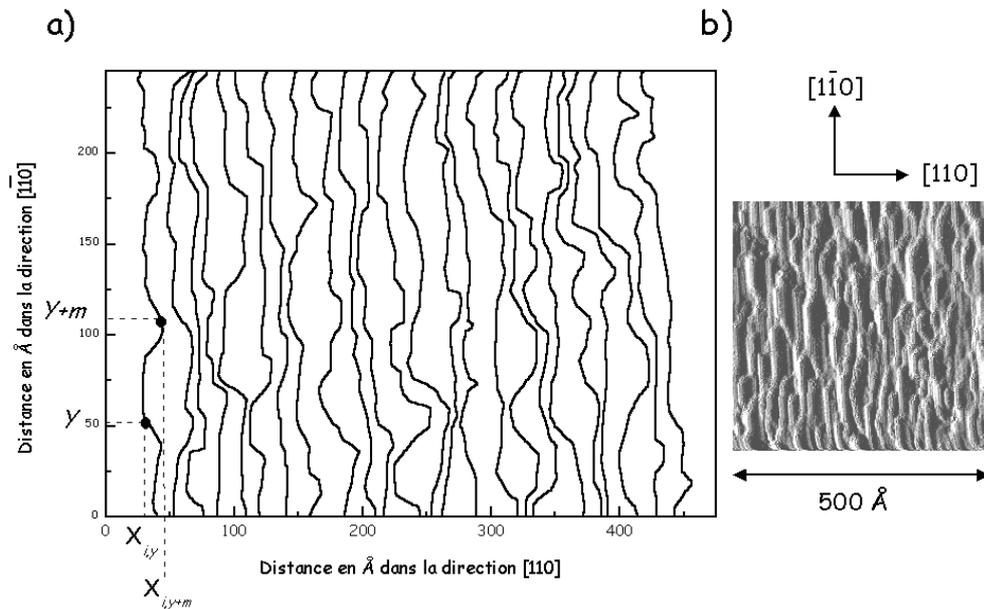


FIG. 7.23: Numérisation des bords de marches du dépôt de 5,5 MC de Co/Cu(1 1 1) à partir de l'image de la figure b. La figure b est la dérivée de l'image STM, le contraste y étant plus important, la numérisation des bords de marches y est plus facile.

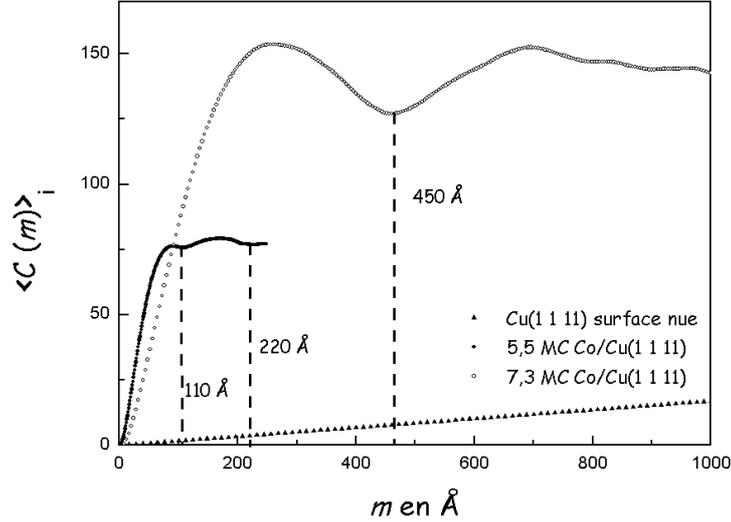


FIG. 7.24: Tracé de la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ pour des dépôts de 5,5 MC et 7,3 MC sur Cu(1 1 11) et de la surface nue de cuivre Cu(1 1 11).

L'ondulation de la marche i peut être caractérisée par le calcul de la fonction de corrélation notée $C_{[1\bar{1}0]}(m)$. Cette fonction s'exprime par :

$$C_{[1\bar{1}0]}(m) = \langle (X_{i,y+m} - X_{i,y})^2 \rangle_y - \langle X_{i,y+m} - X_{i,y} \rangle_y^2 \quad (7.1)$$

avec $X_{i,y}$ la coordonnée selon l'axe $[110]$ d'un point de la $i^{\text{ème}}$ marche situé à la coordonnée y selon l'axe $[1\bar{1}0]$ (figure 7.23). m est l'incrément de la coordonnée y dans la direction $[1\bar{1}0]$. Les valeurs moyennes sont calculées sur y c'est à dire sur toute la marche. Contrairement à une fonction de corrélation classique du type $\langle (X_{i,y+m} - X_{i,y})^2 \rangle_y$, nous avons ôté le carré de la valeur moyenne $(\langle X_{i,y+m} - X_{i,y} \rangle_y)^2$ afin de s'affranchir de la dérive toujours présente sur les images STM.

Finalement, le tracé de la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$, i.e. la valeur moyenne de $C_{[1\bar{1}0]}(y, m)$ sur toutes les marches, en fonction de m (graphe 7.24), laisse apparaître une fréquence d'oscillations de la marche environ tous les 110 Å ce qui correspond à une période de 43 atomes. L'amplitude de la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ nous permet également de remonter à l'amplitude de l'oscillation des marches selon $[1\bar{1}0]$. L'amplitude de l'ondulation selon $[1\bar{1}0]$ est estimée à 12 Å.

La mesure de la fonction de corrélation $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ permettant de déterminer

une période caractéristique d'oscillations des marches ainsi que leur amplitude est présentée dans l'Annexe B de ce chapitre.

Nous avons tracé également sur le graphe 7.24, la fonction de corrélation de la surface de cuivre nue Cu(1 1 11) déterminée par L. Masson [1]. Il est à noter que les fonctions de corrélation obtenues pour 5,5 et 7,3 MC de cobalt présentent un saut pour les faibles valeurs de m . Ceci indique que pour ces épaisseurs, les marches présentent un fort désordre à courte distance. Pour les valeurs élevées de m , la différence entre les fonctions de corrélation de Co/Cu(1 1 11) et celle de la surface nue est quasi constante ce qui traduit le fait qu'à grande échelle le désordre est identique à celui de la surface nue.

Nous avons également tracé la distribution de largeur de terrasses en calculant $\langle \langle X_{i,y} - X_{i+1,y} \rangle_y \rangle_i$ sur le graphe 7.25. La surface de cuivre (1 1 11) présente un pic de distribution de largeur de terrasses étroit centré à 5,5 distances atomiques tandis que la surface 5,5 MC Co/Cu(1 1 11) montre une distribution beaucoup plus large de 1,5 à 8,5 distances interatomiques mais qui reste en moyenne à 5,5. L'amplitude des oscillations de la marche autour de la largeur initiale des terrasses de cuivre est d'environ $\pm 3,5$ distances interatomiques soit environ $\pm 9 \text{ \AA}$, valeur qui est comparable à celle fournie par l'analyse de $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ i.e. 12 \AA .

Cependant contrairement aux observations faites sur le dépôt de 0,01 MC, l'oscillation de la marche i n'influence pas celle des marches $i - 1$ et $i + 1$: les marches "n'oscillent plus en phase", elles sont décorréliées ce qui se traduit par une distribution de largeur de terrasses plus large (graphe 7.25). Pour un dépôt de 5,5 MC, la surface est maintenant principalement composée de cobalt. Puisque que le mouvement d'une marche n'est pas sensible à celui de ces voisines, on peut alors penser que l'interaction entre marche est moins influente que sur un substrat de cuivre (1 1 11).

7.5.2 5,5 MC de Co/Cu(115)

Un dépôt de 5,5 MC de cobalt sur la surface de cuivre (115) est présenté sur la figure 7.22.b. Le réseau de marche initial n'est pas rétabli comme sur Cu(1 1 11). Sur cette surface, il est difficile de suivre les marches d'un bord à l'autre de l'image, la numérisation est alors impossible. L'observation de l' image 7.22.b permet de mesurer très grossièrement une période d'oscillation des marches de 120 \AA ayant une amplitude de 1 à 2 terrasses initiales. (figure 7.22.b). Ce dépôt présente une morphologie avec un réseau organisé de trous carrés de 30 \AA de côté. Puisqu'il existe un désaccord de maille de 2% entre la structure cubique faces centrées du cobalt et celle du cuivre, l'adsorbat est contraint par le substrat. Ainsi en formant des discontinuités, le film de cobalt peut relaxer plus facilement. Ce réseau de trous est observable à grande échelle

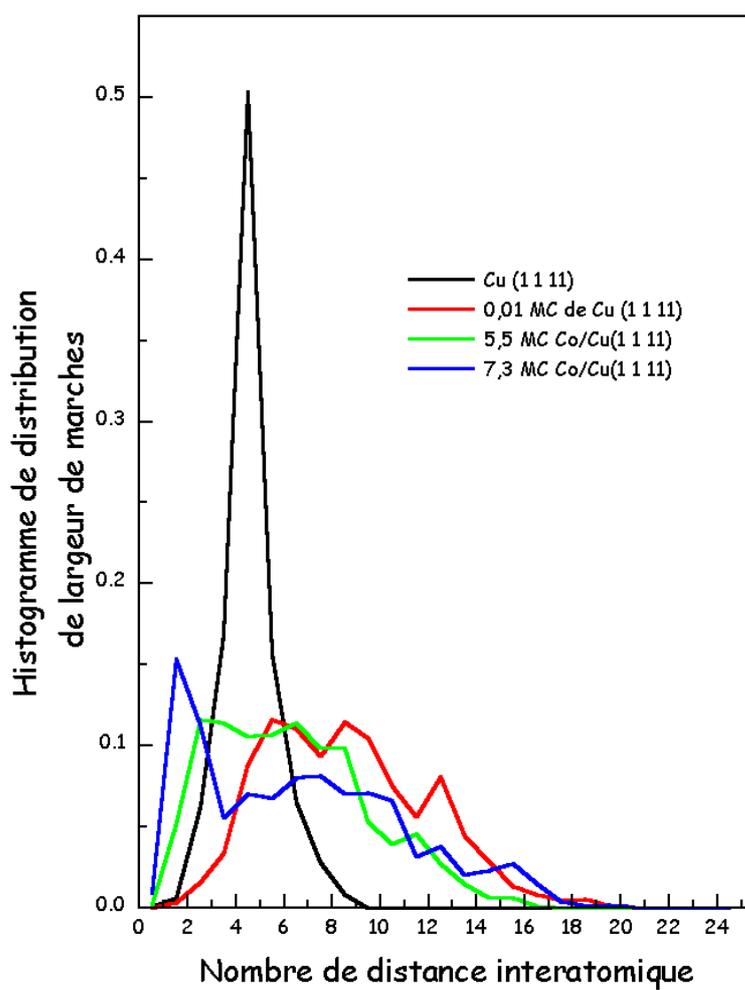


FIG. 7.25: Distribution de largeur de terrasses sur des dépôts de 0 MC, 0,01 MC, 5,5 MC et 7,3 MC sur Cu(1 1 1).

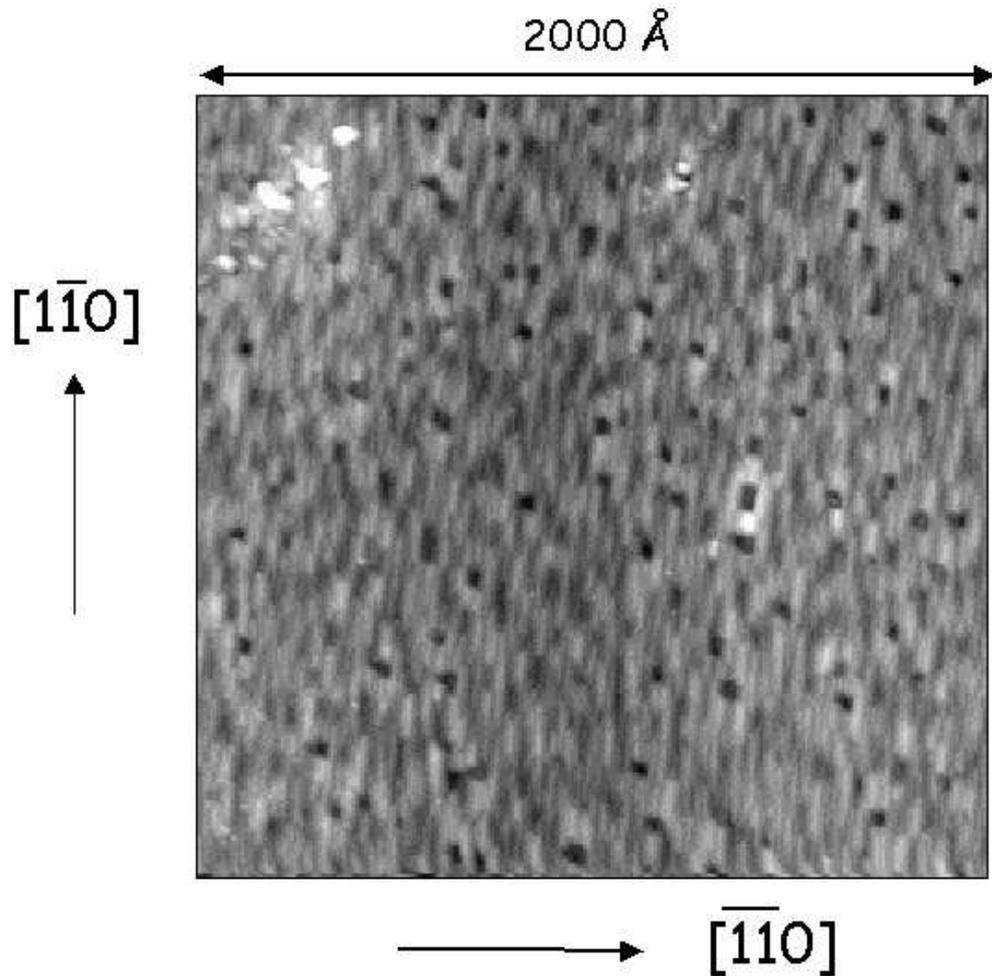


FIG. 7.26: Image STM de $2048 \times 2048 \text{ \AA}$ d'une surface 5,5 MC de Co/Cu(115). Le réseau de trous est clairement visible à cette échelle, il représente environ 5% de la surface.

(figure 7.26) et recouvre environ 5% de la surface.

Sur les profils de hauteur de pointe, on remarque la présence de montée de marche soit d'orientation (111) soit d'orientation moins pentue correspondant à des montées (113) (figure 7.19). Cette observation sera confirmée et expliquée dans le paragraphe 7.6.2.

Il est à noter que des cycles Kerr selon l'axe difficile ont été enregistrés qu'à partir de 6 MC de Co pour Cu(115).

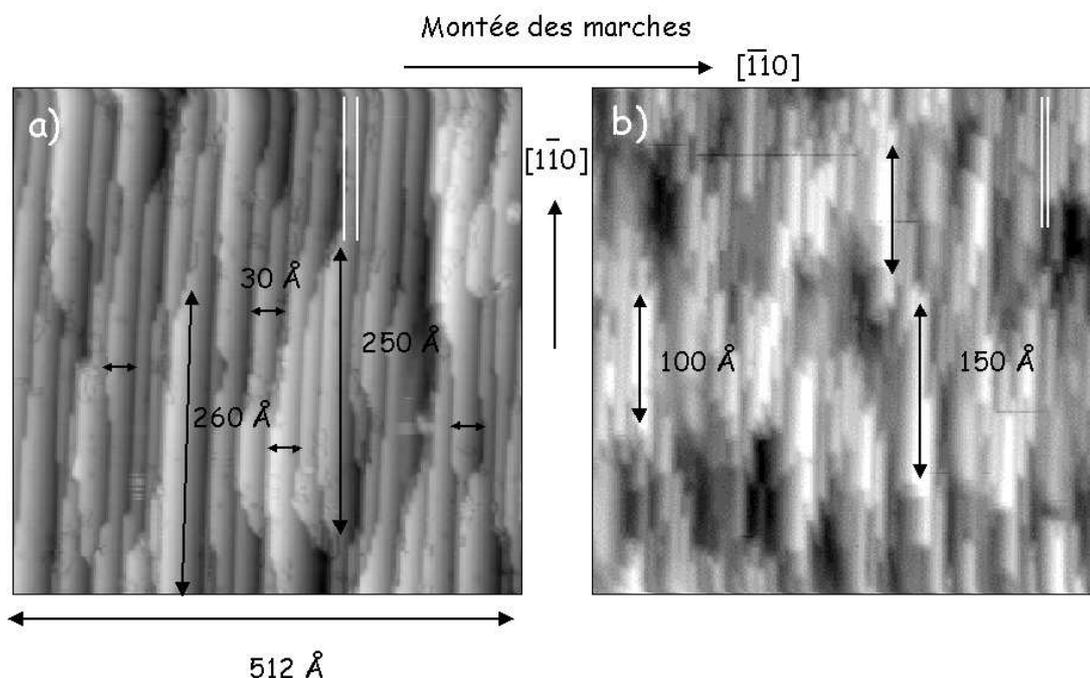


FIG. 7.27: Dépôt de 7,3 MC de cobalt sur Cu(1 1 11) (fig a) et de 8,5 MC sur Cu(1 1 5) (fig b). Les deux traits blancs représentent la distance entre marches consécutives sur le substrat de cuivre nu.

7.5.3 Conclusion

Les dépôts de cobalt d'environ 5 MC sur les vicinales de cuivre (1 1 11) et (115) présentent une morphologie différente. Le facettage des montées ainsi que l'apparition de trous à la surface du films sont caractéristiques du dépôt observé sur Cu(115) tandis qu'un réseau de marche réapparaît sur Cu(1 1 11).

7.6 Dépôt de 8 MC de Co/Cu(1 1 11) et Cu(115)

7.6.1 7,3 MC de Co/Cu(1 1 11)

La morphologie d'un dépôt de 7,3 MC de cobalt sur Cu(1 1 11) montre un réseau de marches relativement régulier (figure 7.27.a). Les terrasses y sont quasiment deux fois plus larges que sur la surface de cuivre initiale. La distribution de largeur de terrasses (figure 7.25) présentent deux pics : un centré sur 8 distances interatomiques et le second sur 1,5. Ceci indique la présence de terrasses quasiment doubles et de terrasses très étroites (hauteur de marche quasi double). Cette observation est également confirmée par le profil de hauteur de pointe (graphe 7.16).

L'oscillation des marches a été quantifiée grâce à la numérisation des bords de marches et au calcul de la fonction de corrélation $\langle C_{[\bar{1}\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ tracée sur le graphe 7.24. Cette fréquence d'ondulation de marche est de 450 Å. L'amplitude de l'oscillation dans la direction $[\bar{1}\bar{1}0]$ estimée à partir de l'amplitude de $\langle C_{[\bar{1}\bar{1}0]}(m) \rangle_i$, est de 18 Å.

7.6.2 8,4 MC Co/Cu(115)

La morphologie de ce dépôt est fortement différente de celle observée sur Cu(1 1 11). A grande échelle, on remarque une autoorganisation des marches de type chevrons (figure 7.28). Cette organisation des marches est schématisée sur la figure 7.29. Les zones claires de l'image 7.28 sont vraisemblablement dues à une avancée collective des marches tandis que les parties sombres à un recul. Une distance caractéristique de 100 à 150 Å dans la direction du bord de marche est mesurée. Nous mesurons donc très grossièrement une période d'oscillations des marches de 300 Å avec une amplitude d'environ deux terrasses.

Les profils de hauteur de pointe indiquent des montées des marches moins raides que pour les faibles taux de couverture tandis que les terrasses restent selon (001). En analysant plus finement les images, nous avons montré que ces montées étaient en fait constituées de marches (figure 7.30). En effet, le cercle A montre une face ascendante sur laquelle on distingue des marches séparées de 4 Å. Cette largeur de terrasses de 4 Å correspond à 1,5 distances interatomiques i.e. à des montées de type (113). Nous concluons donc qu'il y a formation de facettes de type (113) et de terrasses (001).

7.6.3 Conclusion

Sur les deux types de substrats, le cobalt pour des dépôts d'environ 8 MC, ne reproduit pas la vicinalité du substrat. Le moteur principal de ces morphologies différentes de celle du substrat est sans doute la relaxation du cobalt contraint par le cuivre. Pour 7,3 MC Co/Cu(1 1 11), les terrasses sont deux fois plus larges que celles du substrat tandis que pour 8,4 MC Co/Cu(115), les tronçons de marches s'autoorganisent. La formation de marches doubles est également rencontrée sur Pd/Cu(1 1 11) échantillon sur lequel se forme un alliage ordonné [9]. Ces comportements différents sont à associer aux propriétés particularisant chacun des substrats. Sur Cu(115), nous observons un facettage du plan (115) en faces ascendantes de type (113) avec des terrasses (001) alors que sur Cu(1 1 11), on observe plutôt des doubles marches suivies de terrasses doubles. La stabilité des faces vicinales de cuivre a été étudiée théoriquement par M. C. Desjonquères et al [14]. Ces derniers montrent que les faces vicinales de cuivre (11n) sont stables. Ils mettent également en évidence que la différence d'énergie entre une face (115) et une surface constituée de plans (113) et (001) est faible. On peut

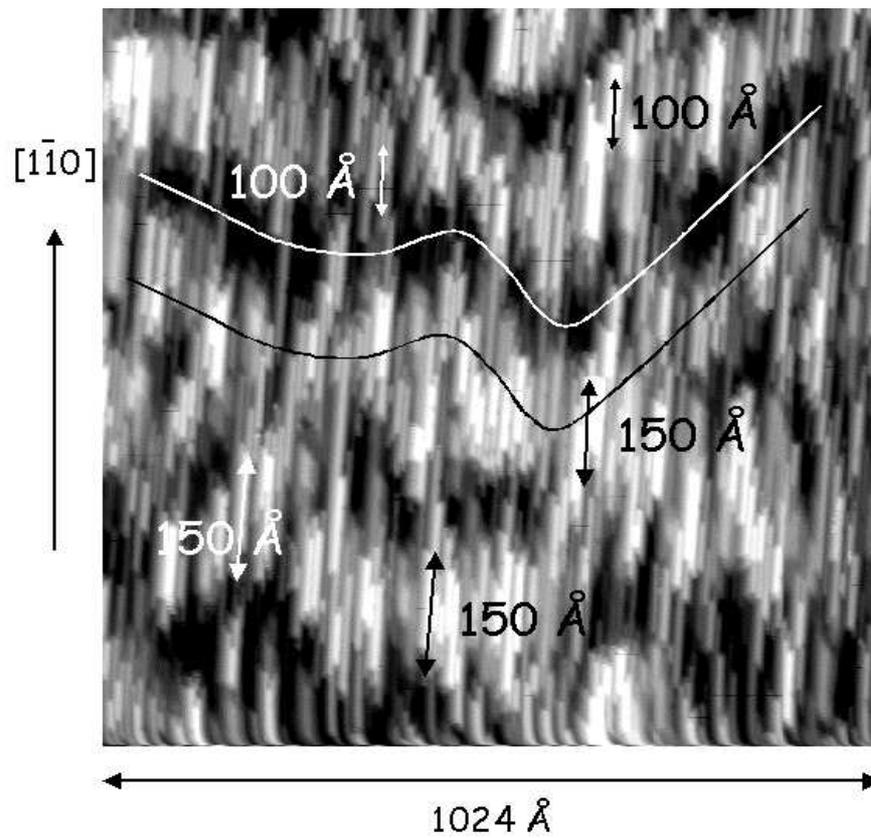


FIG. 7.28: Image STM réalisée sur un échantillon de 8,4 MC de Co/Cu(115). La ligne blanche souligne la corrélation existant entre les marches. Nous avons volontairement accentué le contraste de cette image pour faire ressortir cette autoorganisation des marches.

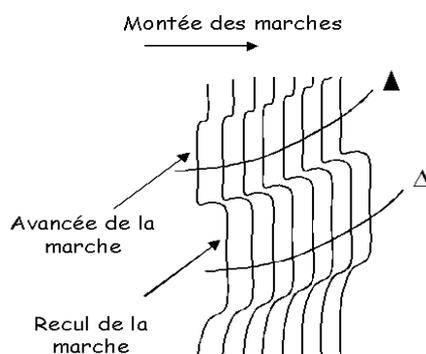


FIG. 7.29: Schéma illustrant l'image 7.28. La ligne \blacktriangle tracée sur cette image correspond à une avancée plus ou moins en phase des marches, tandis que la ligne blanche schématisée par la courbe Δ , indique un recul des bords de marches.

alors penser que les surfaces vicinales avec du cobalt sont moins stables que celles de cuivre nue et ont donc tendance à facetter.

7.7 Films de cobalt recuits sur Cu (1 1 11)

De manière générale, les films de cobalt sur Cu(1 1 11) ayant subis un recuit à 100°C pendant 15 minutes, présentent des marches mieux organisées que les dépôts non recuits. De plus la largeur moyenne des terrasses pour les films recuits est identique à celle du substrat de cuivre (i.e. 14 Å). Dans le cas de Pd/Cu(1 1 11), Goapper et al. montrent également qu'à 450 K, les marches sont simples [9].

7.8 Conclusion générale sur la morphologie des films de cobalt sur Cu(1 1 11) et Cu(115)

Grâce à cette analyse de morphologie des films de cobalt sur des vicinales de cuivre (11n), nous avons montré que dès les premiers stades de croissance, l'évaporation de cobalt perturbe fortement le cuivre. L'hypothèse d'un substrat figé avec un dépôt couche par couche est rapidement éliminée, on montre alors que la présence des marches favorise la mobilité des atomes de cuivre et une interdiffusion cobalt-cuivre se produit. Cette dernière est d'autant plus importante que les terrasses sont étroites.

Les relaxations des contraintes du cobalt sont sans doute un moteur important qui gouverne les morphologies des dépôts pour minimiser l'énergie de contraintes. D'autres

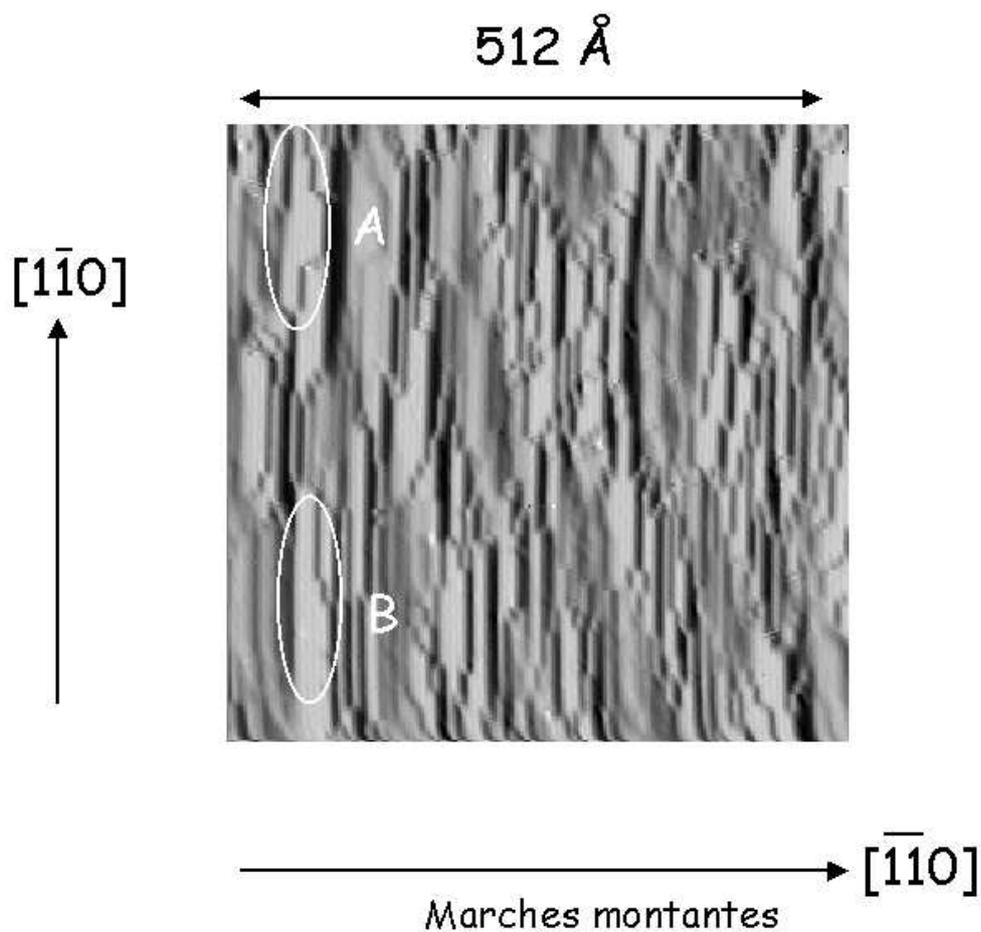


FIG. 7.30: Image STM ($512 \times 512 \text{ \AA}^2$) en dérivée obtenue sur 8,4 MC Co/Cu(115). Le cercle A montre la face ascendante des marches sur laquelle on observe des bords de marches. La distance entre ces marches est de 4 Å environ. De même pour le cercle B.

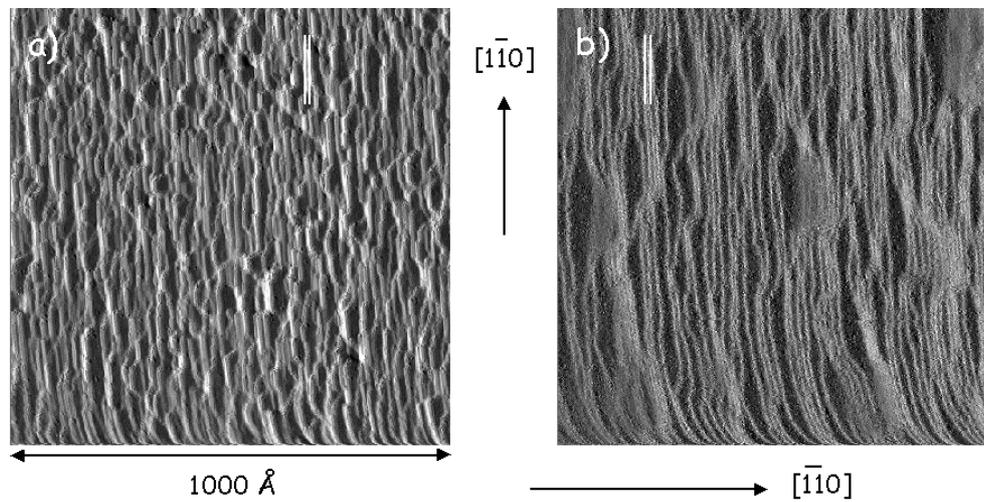


FIG. 7.31: Images STM en dérivé d'un dépôt de 5,5 MC de Co/Cu(1 1 1) sans recuit (fig a) avec recuit à 100 °C pendant 15 minutes (fig b). Les deux traits blancs représentent l'espacement entre deux marches consécutives sur le substrat de cuivre avant évaporation du cobalt.

facteurs aussi importants tels que les différentes d'énergies de surface entre le cobalt et le cuivre, les interactions entre marches sont présents et sont en compétition. Certains d'entre eux tels que les interactions entre marches ou les contraintes du cobalt sont typiquement liées au substrat sur lequel est déposé le cobalt. Une compétition entre ces divers phénomènes physiques a lieu et leur contribution doit varier en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée étant donnée la grande variation de morphologie des films en fonction de l'épaisseur et de la nature du substrat.

7.9 Annexe A

Nous allons dans ce paragraphe, déterminer à partir d'une image STM, la quantité de cobalt évaporé sur Cu(1 1 1). Nous avons vu que la pointe ne distinguait pas le cobalt du cuivre ce qui rend la calibration impossible. La figure 7.33 présente une image d'un dépôt "présumé" de 0,01 MC de cobalt sur Cu(1 1 1). On remarque la présence d'une très large terrasse d'environ 300 Å, cette dernière était sans doute présente avant l'évaporation de cobalt. En effet, les impuretés à la surface ont tendance à être un point d'ancrage pour les marches pendant le processus de nettoyage de l'échantillon par bombardement ionique. Après évaporation de cobalt, l'image 7.33 montre des îlots blancs répartis sur la grande terrasse. Ces petits domaines sont vraisemblablement des atomes de cobalt éventuellement entourés de cuivre. La hauteur de ces îlots est

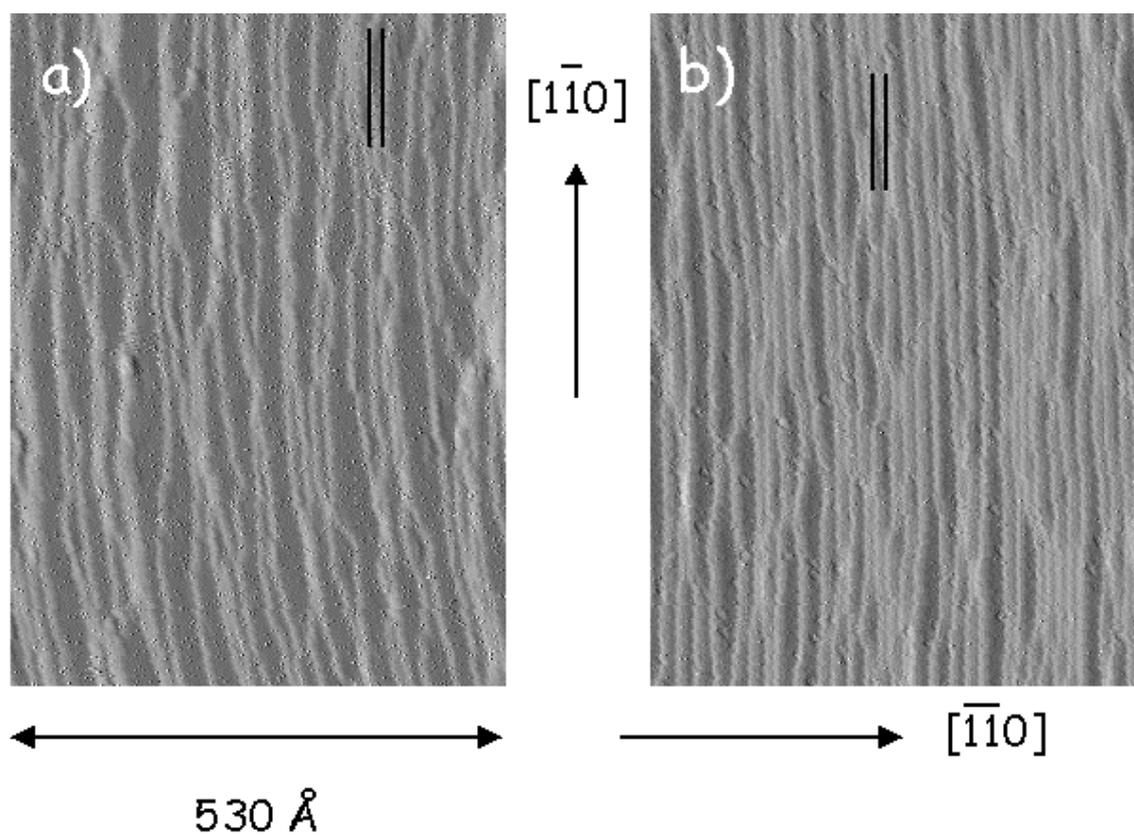


FIG. 7.32: Images STM en dérivée de 8 MC de Co/Cu(1 1 1) sans recuit (fig a) avec recuit à 100 °C pendant 15 minutes (fig b). Les deux traits noirs représentent l'espacement entre deux marches consécutives sur le substrat de cuivre avant évaporation du cobalt. La figure a présente des terrasses doubles tandis que la surface recuite montre des terrasses plutôt simples.

monoatomique. En mesurant leur densité surfacique, on trouve qu'ils représentent environ 3% de la surface. Cette valeur est légèrement supérieure à la densité de cobalt et confirme le dépôt théorique de 0,01 MC auquel on s'attendait. Enfin puisque les mêmes conditions d'évaporation ont été utilisées pour les dépôts sur Cu(1 1 11) et Cu(115) et étant donné la bonne reproductibilité de l'évaporateur, on conclue que les images de la figure 7.6 sont bien celles effectuées sur une évaporation de l'ordre de 0,01 MC.

7.10 Annexe B

Cette annexe est consacrée au calcul de la fonction de corrélation de type $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ sur des marches ayant une oscillation sinusoïdale de période connue. Avec les deux exemples qui suivent nous avons voulu mettre en évidence que la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ oscillait à la même fréquence que celles des marches. Par conséquent, l'étude de cette fonction permet de déterminer la période moyenne d'oscillations à partir des bords de marches que nous avons numérisés sur les images STM.

Le premier exemple utilisé est une marche modèle présentant une oscillation sinusoïdale. La marche est représentée sur la figure 7.34.a et la fonction de corrélation $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ associée sur la figure 7.34.b.

Le second exemple est celui d'un ensemble de marches de même période d'oscillation mais de déphasage différent. La fonction de corrélation associée $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ est obtenue en faisant la moyenne de $C_{[1\bar{1}0]}(m)$ sur l'ensemble des marches. Elle est représentée sur la figure 7.35.b.

Dans les deux exemples modèles précédemment exposés, la fonction de corrélation oscille à la même fréquence que les marches. Ainsi à partir des bords de marche numérisés, nous allons pouvoir extraire une fréquence caractéristique d'oscillation des marches.

On montre sur des marches sinusoïdales de même période d'oscillations (10 \AA) et d'amplitude A (2 \AA) que l'amplitude A_C de la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ associée est égale à $\frac{A^2}{2}$. Ce résultat est vérifié numériquement sur la courbe en traits pointillés tracée sur le graphe 7.36 pour laquelle $A_C = 2$. Si on considère maintenant un ensemble de marches avec une certaine dispersion de la période autour de 10 \AA et une amplitude d'oscillations A restant égale à 2 \AA , on obtient la fonction de corrélation représentée sur le graphe (7.36) en trait plein. La dispersion en période, influe sur l'amplitude A_C de la fonction de corrélation, cependant l'amplitude de la première oscillation de $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ est proche de celle observée pour des marches de période identique. Ainsi en mesurant la hauteur de cette première oscillation avec $A_c = \frac{A^2}{2}$, on peut alors

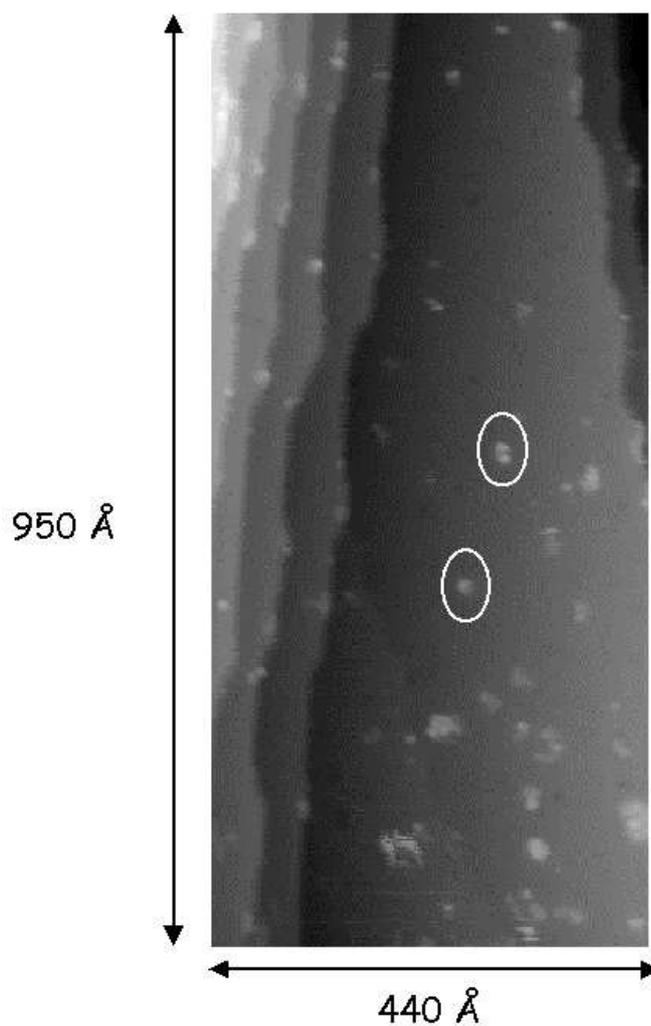


FIG. 7.33: Image STM d'un dépôt présumé de 0,01 MC de cobalt sur Cu(1 1 1). Cet échantillon a la caractéristique de posséder une large terrasse sans doute due à une impureté qui accroche les marches. Cette image va nous permettre de vérifier que nous avons bien évaporé 0,01 MC de cobalt.

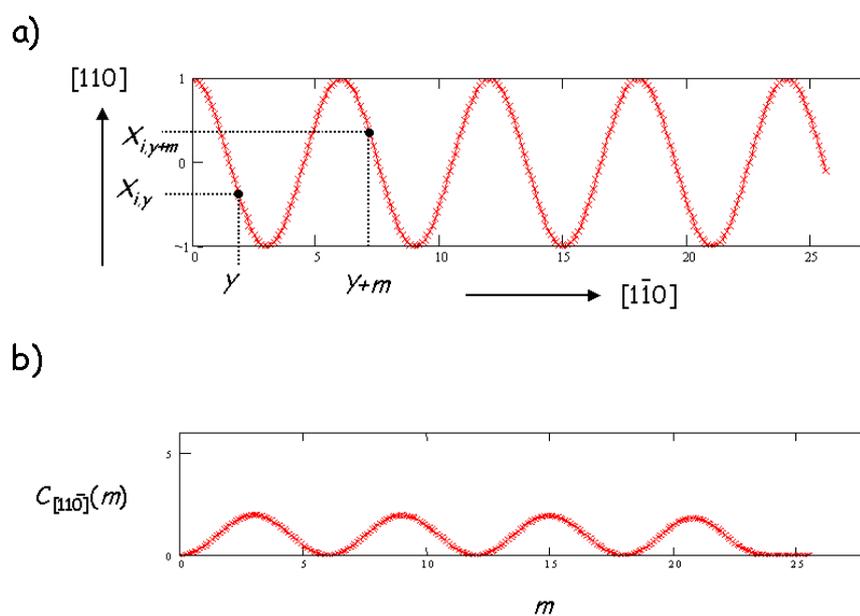


FIG. 7.34: Le graphe a) correspond a un bord de marche présentant une oscillation de type sinusoïdal. Le graphe b) est le tracé de la fonction de corrélation $C_{[1\bar{1}0]}(m)$ associée à la marche du graphe a). Cette fonction est par conséquent sensible à la fréquence d'oscillations de la marche.

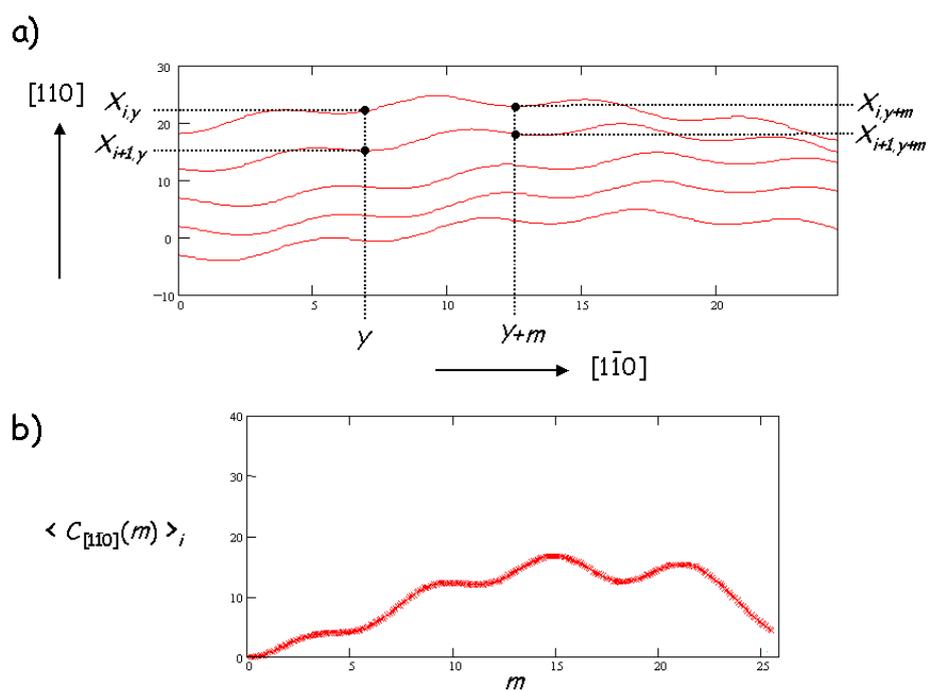


FIG. 7.35: Sur le graphe a est représenté plusieurs marches oscillant à une fréquence identique avec un certain déphasage les unes par rapport aux autres et une certaine déviation. Sur le graphe est tracée la fonction de corrélation $\langle C_{[110]}(m) \rangle_i$ associée à ces marches.

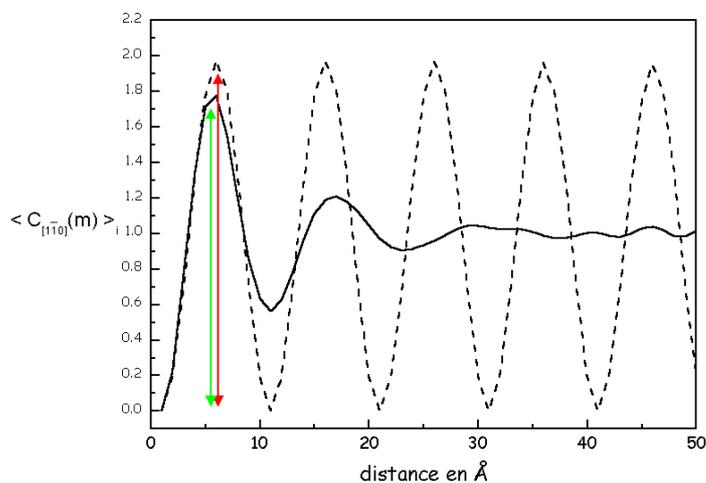


FIG. 7.36: Graphe représentant la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ pour différents modèles de marches. En pointillés est représentée la fonction $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ pour des marches sinusoïdales oscillant avec une période de 10 Å et une amplitude A de 2 Å. En trait plein est tracée la fonction de corrélation $\langle C_{[1\bar{1}0]}(m) \rangle_i$ pour des marches ayant une distribution de période d'oscillation autour de 10 Å avec une amplitude de 2 Å.

remonter à une valeur de l'amplitude des oscillations des marches.

Bibliographie

- [1] Laurence Masson, thèse de doctorat de l'université Paris XI (1994).
- [2] L. Masson, L. Barbier, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **317**, L1115 (1994).
- [3] L. Barbier, L. Masson, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **345**, 197 (1996).
- [4] Eric Le Goff, thèse de doctorat de l'université Paris VI (1999).
- [5] E. Le Goff, L. Barbier, L. Masson et B. Salanon, Surf. Sci. **432**, 139 (1999).
- [6] J. Fassbender, R. Allenspach et U. Düring, Surf. Sci. **388**, L742 (1997).
- [7] F. Nouvertné, U. May, M. Bammig, A. Rampe, U. Korte et G. Güntherodt, Phys. Rev. B **60**, 14382 (1999).
- [8] L. Masson, L. Barbier, J. Cousty et B. Salanon, Surf. Sci. **338**, 60 (1995).
- [9] S. Goapper, L. Barbier et B. Salanon, Surf. Sci. **364**, 99 (1996).
- [10] P. Gambardella, M. Blanc, L. Bürgi, K. Kuhnke et K. Kern, Surf. Sci. **449**, 93 (2000).
- [11] F. Dulot, B. Kierren et D. Malterre, Surf. Sci. **494**, 229 (2001).
- [12] Frédéric Dulot, thèse de doctorat de l'université Henri Poincaré Nancy I (2000).
- [13] Cohesion in metals, transition metal alloys, F. R. de Boer et al. North Holland (1998).
- [14] M. C. Desjonquères, D. Spanjaard, C. Barreteau et F. Raouafi, Phys. Rev. Lett. **88**, 056104 (2002).

Chapitre 8

Structure du cobalt sur Cu(1 1 1) et Cu(115) par SEXAFS

La structure des dépôts de cobalt sur les surfaces vicinales de cuivre Cu(1 1 1) et Cu(115) a été étudiée par EXAFS de surface (SEXAFS) au seuil K du cobalt. Cette technique nous a permis de déterminer les distances moyennes premiers voisins autour des atomes de cobalt. Ces expériences utilisant le rayonnement synchrotron ont été menées sur la ligne wiggler DW21 du Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique avec l'équipe de Dominique Chandèsris. L'enceinte ultra-vide ainsi que la ligne de lumière sont décrites dans le chapitre 4. La partie théorique présentant les logiciels (FEFF6, FEFFIT) et les modèles utilisés pour extraire la structure des dépôts de cobalt sont exposés dans le chapitre 3 afin d'alléger et de rendre plus lisible cette partie consacrée aux résultats expérimentaux.

Le cobalt ayant un paramètre de maille plus petit que celui du cuivre (2 %), le fait d'évaporer sur un substrat nanostructuré présentant d'étroites terrasses peut être à l'origine d'anisotropie structurale, ce qui a notamment été observé pour les échantillons découpés par la méthode de la scie atomique [1]. Ce chapitre va nous permettre de mesurer les éventuelles distorsions de la maille de cobalt qui peuvent générer une anisotropie magnétique.

Nous allons dans ce chapitre étudier la structure des films minces de cobalt en fonction de leur épaisseur. Dans une première partie, nous présenterons brièvement nos résultats puis nous définirons les notations que nous utiliserons par la suite. Les parties suivantes seront consacrées aux résultats structuraux détaillés classés par épaisseur croissante des dépôts de cobalt réalisés sur Cu(1 1 1) et Cu(115). Dans chacune des parties, ces résultats seront analysés, interprétés et comparés à la structure du cobalt mesurée pour un dépôt identique sur un substrat plat de cuivre (001). Enfin seront présentés en annexe, les spectres expérimentaux comparés avec les meilleurs

ajustements des modèles théoriques.

8.1 Conditions expérimentales

Nous avons étudié en EXAFS de surface environ une dizaine d'échantillons différents avec des épaisseurs de cobalt variant de 0,5 à 8 MC déposées sur Cu(1 1 11) et Cu(115). L'évaporation a été effectuée principalement à température ambiante, certaines ont été réalisées à 262 K et 77 K et les mesures d'EXAFS ont été faites à 77 K afin de réduire l'agitation thermique qui diminue l'amplitude du signal EXAFS (chapitre 3).

8.2 Utilisation de la polarisation linéaire du rayonnement synchrotron

Comme nous l'avons vu précédemment dans le chapitre 5.2 regroupant les études structurales antérieures menées sur les films de Co/Cu(001), le cobalt croît dans une structure tétragonale à faces centrées sur un substrat de cuivre plat (001) [3][4]. En faisant l'hypothèse que sur une surface vicinale présentant des terrasses (001), la structure du cobalt reste du même type, nous distinguerons trois catégories de liaisons premiers voisins autour des atomes de cobalt (schéma 8.1). La longueur des liaisons dans le plan (001) parallèles aux bords de marches est notée R_{PA} , celle des liaisons dans la direction [110] perpendiculaires aux bords de marches est R_{PE} . Les longueurs des liaisons hors du plan (001) sont désignées par l'appellation R_{HP} . Ces différentes liaisons sont représentées sur le schéma 8.1.

L'utilisation de la polarisation linéaire du rayonnement synchrotron, nous permet de favoriser certaines liaisons. Dans le chapitre 3 consacré à la théorie de l'EXAFS, nous avons montré que le nombre d'atomes de la $i^{\text{ème}}$ couche de voisins N_i^* contribuant au signal EXAFS dépendait de l'orientation de la polarisation par rapport à la direction des liaisons (paragraphe 3.3.3). Dans l'approximation de la diffusion simple, N_i^* s'écrit :

$$N_i^* = 3 \sum_j^{N_i} \cos^2 \theta_i^j \quad (8.1)$$

avec j l'indice représentant un atome constituant la $i^{\text{ème}}$ couche, N_i le nombre total d'atomes de cette couche et θ_i^j l'angle entre la liaison atome central-atome j de la $i^{\text{ème}}$ couche et la polarisation. Nous avons enregistré les spectres EXAFS en utilisant trois orientations de polarisation. La première configuration appelée **PA** est une configuration dans laquelle la polarisation est parallèle à la direction $[1\bar{1}0]$ i.e. colinéaire aux

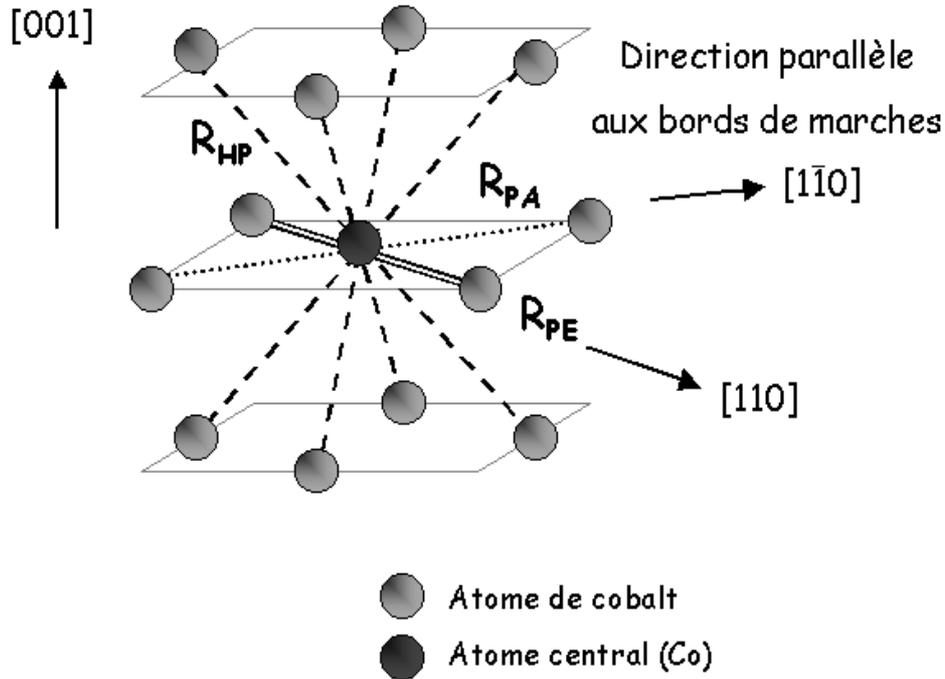


FIG. 8.1: Schéma représentant les liaisons composant la première couche de voisins du cobalt dans une structure cubique à faces centrées.

N_i^*	Configuration PA	Configuration PE	Configuration HP
Liaisons R_{PA}	6	0	0
Liaisons R_{PE}	0	6	0
Liaisons R_{HP}	6	6	12

TAB. 8.1: Tableau regroupant les valeurs de N_i^* pour les différentes configurations de polarisation dans une structure cubique à faces centrées.

bords de marches. La seconde notée **PE** aligne la polarisation avec la direction $[110]$ perpendiculaire aux bords de marches. Enfin la troisième configuration présente la polarisation perpendiculairement au plan (001) , elle est désignée par la notation **HP**. Les valeurs des N_i^* pour chacune des liaisons premiers voisins (R_{PA} , R_{PE} et R_{HP}) sont regroupées dans le tableau 8.1 pour les trois configurations de polarisation. Ces valeurs sont calculées dans une structure cubique à faces centrées (schéma 8.1) pour un cristal massif.

Dans la configuration **HP**, d'après la formule 8.1, le signal EXAFS de la première couche de voisins est uniquement du à la contribution des liaisons hors-plan (R_{HP}). Dans la configuration **PA**, le signal EXAFS de la première couche est la somme des contributions des liaisons parallèles aux bords de marches (R_{PA}) ainsi que des liaisons

hors-plan (R_{HP}). Dans la troisième configuration **PE**, les liaisons perpendiculaires aux bords de marches (R_{PE}) et celles hors-plan (R_{HP}) contribuent au signal. Dans la pratique, pour des raisons techniques afin d'avoir un flux suffisant sur l'échantillon, en polarisation **HP**, nous sommes en fait à environ 20° de la normale au plan (001). De plus, pour les incidences **PA** et **PE**, nous faisons souvent varier l'angle d'incidence pour éliminer les glitches (figure 4.9). Ces variations d'angle d'incidence peuvent amener des variations de N_i^* par rapport aux valeurs regroupées dans le tableau 8.1. Dans les modélisations de nos spectres par FEFF6 et FEFFIT, nous avons considéré l'angle d'incidence exact sur l'échantillon pour déterminer la structure.

8.3 Explication des différentes étapes de l'analyse

Nous présentons, sur la figure 8.2, un spectre EXAFS typique d'un film de 8 MC Co/Cu(1 1 11). Pour les trois directions de polarisation, nous observons que les oscillations EXAFS sont bien marquées et qu'il existe une certaine anisotropie (cf trait en pointillés sur la figure 8.2). Afin d'isoler la contribution de chaque couche de voisins, nous avons calculé pour chaque spectre la transformée de Fourier (TF) des oscillations EXAFS $\chi(k)$. Nous calculons en fait la TF de $k\chi(k)$ pour amplifier le rôle joué par les voisins plus lointains. La méthode d'extraction de la transformée de Fourier est classique et est détaillée dans la thèse d'Hélène Magnan [5]. Par abus de langage, nous utiliserons souvent le terme TF pour désigner le module de la transformée de Fourier. Les modules de différentes transformées de Fourier sont représentés sur la figure 8.3 en comparaison avec celui obtenu sur un substrat monocristallin de cuivre massif (cubique à faces centrées).

Sur l'amplitude de la transformée de Fourier (TF), le premier pic est identifié à la contribution de la première couche de voisins et les pics suivants sont dus aux voisins plus éloignés et aux chemins de diffusion multiple. L'apparence des modules des TF est clairement reliée à la structure des dépôts étudiés. O. Heckmann et al. montrent que la tétragonalisation de la maille de cobalt sur Cu(001) modifie nettement les TF des voisins éloignés [3]. En comparant le module des TF du fer massif (cubique centré) avec ceux obtenus sur 8 MC de Co/Cu(1 1 11), nous pouvons clairement exclure la structure cubique centrée pour les films de cobalt déposés sur des surfaces vicinales de cuivre. D'après les similitudes entre les TF obtenues sur Co/Cu(001) et Co/Cu(1 1 11) (intensité relative des différents pics et même dépendance en polarisation), nous pouvons penser que le cobalt croît vraisemblablement de manière quasi identique sur le cuivre plat (001) et sur le cuivre à marches Cu(1 1 11).

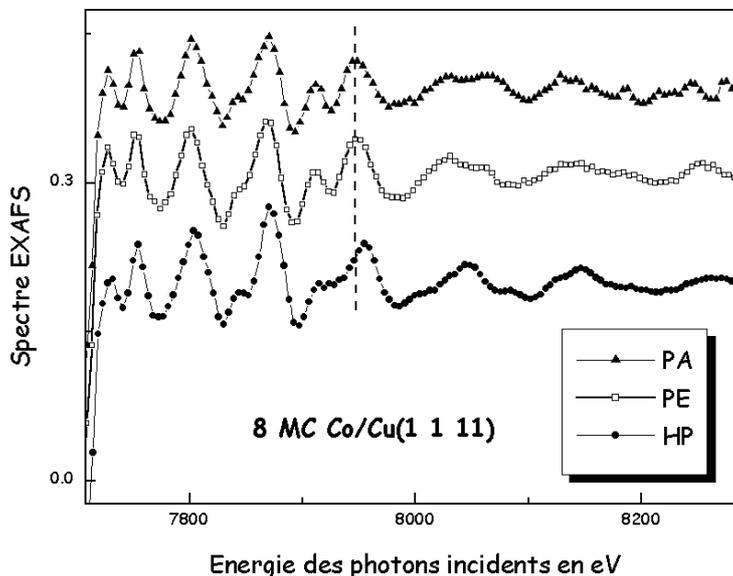


FIG. 8.2: Spectres EXAFS obtenus sur 8 MC de Co/Cu(1 1 1) dans les trois configurations de polarisation.

8.4 Ajustement des modèles théoriques à l'expérience

La modélisation des spectres EXAFS est utilisée afin de déterminer quantitativement les distances premiers voisins et la structure du cobalt. Les deux logiciels nous ayant permis de simuler et d'ajuster la théorie à l'expérience sont FEFF6 et FEFFIT. Les modèles utilisés sont décrits précisément dans le paragraphe 3.6.4 et les mêmes appellations sont employées dans ce chapitre.

Afin d'ajuster les calculs théoriques aux résultats expérimentaux, nous avons utilisé plusieurs modèles : le modèle appelé modèle "film épais" i.e. un film de cobalt d'épaisseur infinie, le modèle "1 MC" avec 1 MC de cobalt sur du cuivre, le modèle "2 MC" i.e. 2 MC de cobalt sur du cuivre et le modèle dit "1 MC recouverte" comportant 1 MC de cobalt recouverte d'une monocouche de cuivre. Ces modèles sont détaillés avec précision dans le chapitre 3. Afin de savoir quel modèle s'ajuste le mieux aux données expérimentales, nous comparons les différentes valeurs de χ_ν^2 (χ^2 réduit) obtenues pour chacun des ajustements. Ce terme χ_ν^2 est défini de la manière suivante [2] :

$$\chi_\nu^2 = \frac{\chi^2}{\nu} \quad (8.2)$$

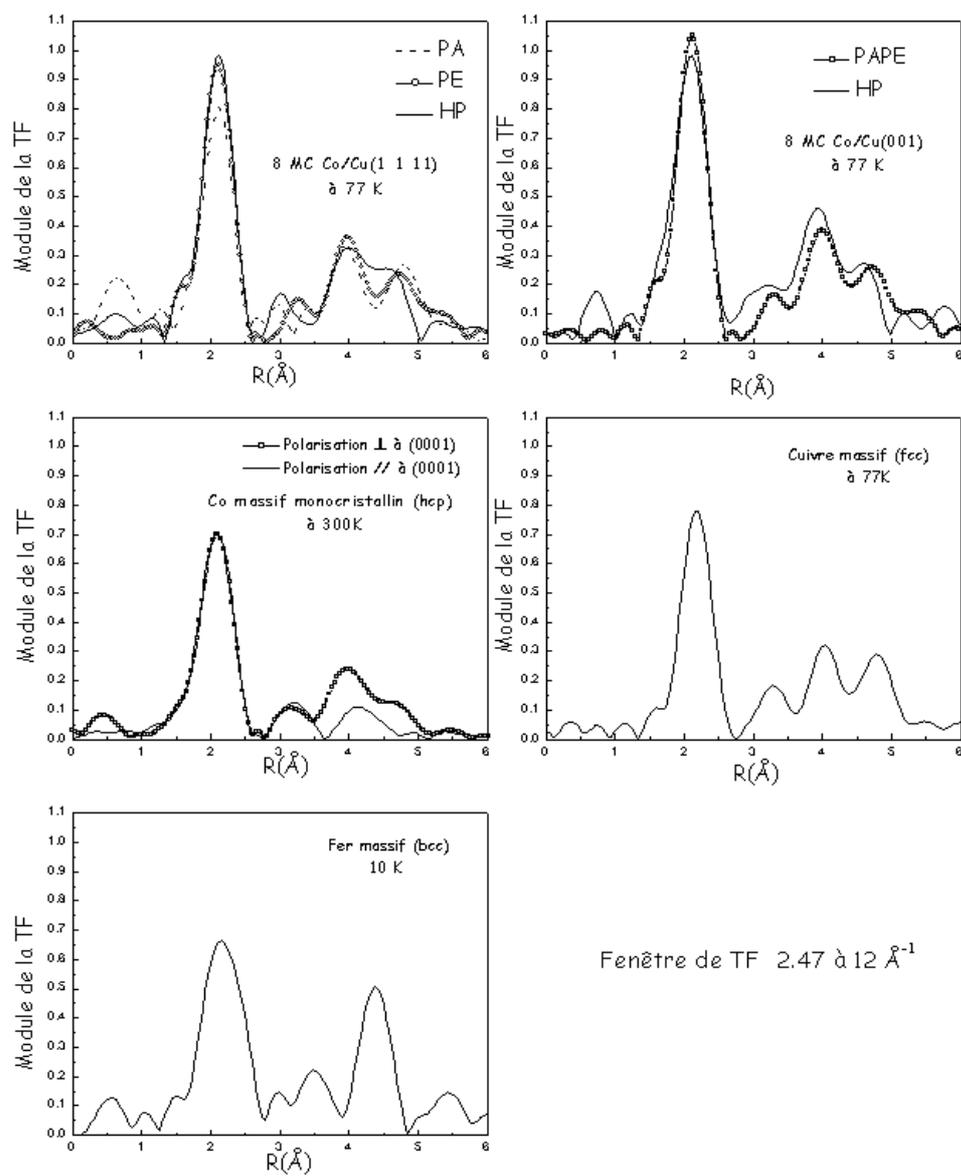


FIG. 8.3: Comparaison de différents modules des transformées de Fourier obtenus pour des cristaux présentant des structures différentes.

avec ν le nombre de degré de liberté de l'ajustement et χ^2 s'écrit

$$\chi^2 = \frac{N_{ind}}{N} \sum_i^N \left(\frac{\chi_{exp}^i(k) - \chi_{modèle}^i(k)}{\varepsilon_i} \right)^2 \quad (8.3)$$

avec ε_i l'incertitude de mesure au point i , dans la pratique une valeur unique ε de l'incertitude est utilisée. N le nombre de points du spectre des oscillations EXAFS $\chi_{exp}(k)$ et N_{ind} le nombre de points indépendants est défini par :

$$N_{ind} = \frac{2(k_{max} - k_{min})(R_{max} - R_{min})}{\pi} + 2 \quad (8.4)$$

avec R_{max} (R_{min}) la borne maximale (minimale) de la transformée de Fourier de $\chi(k)$ prise entre $[k_{min}, k_{max}]$.

Dans la formule 8.2, ν le degré de liberté de l'ajustement s'écrit :

$$\nu = N_{ind} - N_{var} \quad (8.5)$$

avec N_{var} le nombre de variables ajustables utilisées dans le fit. Ces N_{var} variables sont récapitulées dans le tableau 3.1 pour chacun des modèles utilisés. Dans notre cas et puisque nous ajustons les trois configurations de polarisation simultanément avec un même modèle, χ_ν^2 est égal à $\frac{\chi^2(PA) + \chi^2(PE) + \chi^2(HP)}{\nu}$.

Pour comparer l'efficacité des différents modèles pour des échantillons différents, nous utilisons le facteur f qui est égal à la valeur de χ_ν^2 d'un modèle donné normalisée par la valeur de χ_ν^2 du modèle offrant le meilleur accord avec l'expérience. Ainsi plus f est supérieur à 1, moins le modèle simule correctement les données expérimentales.

Par la suite, nous ne présenterons que les résultats calculés avec FEFF6 et FEFFIT, mais nous avons également réalisé des ajustements des spectres expérimentaux avec la méthode traditionnelle (paragraphe 3.6.3). Comme cette dernière méthode ne permet pas de vérifier si le modèle déterminé fonctionne également pour les voisins éloignés nous avons préféré utilisé FEFFIT. Cependant, en ce qui concerne la couche de premiers voisins, les résultats obtenus par FEFFIT et par la méthode classique sont équivalents.

8.5 Structure des films de 0,5 MC Co/Cu(1 1 1)

Les oscillations EXAFS obtenues sur des dépôts de 0,5 MC de Co/Cu(1 1 1) sont présentées sur la figure 8.4. Les spectres mesurés dans la configuration **PA** et **HP** sont similaires. Puisque les oscillations EXAFS sont principalement dues à la première couche de voisins, on peut alors penser à première vue que les longueurs de liaisons R_{PA} et R_{HP} sont identiques. Le spectre **PE** quant à lui oscille plus rapidement :

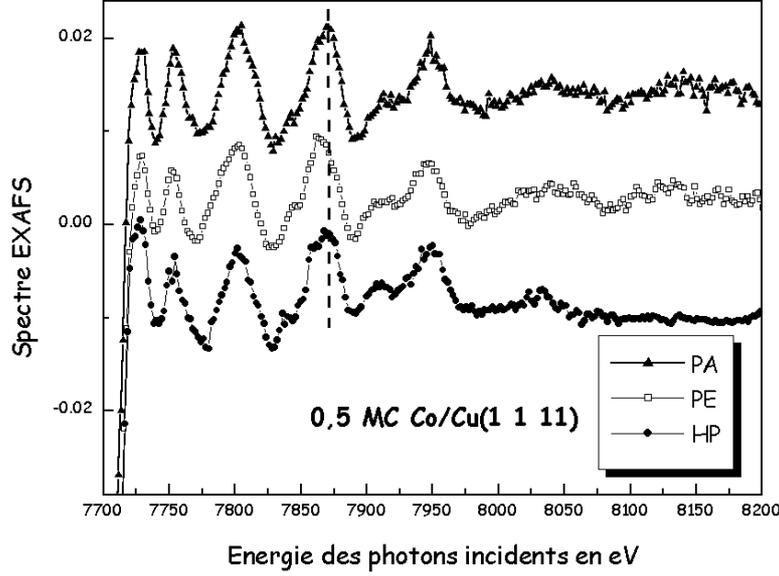


FIG. 8.4: Spectres EXAFS sur un dépôt de 0,5 MC Co/Cu(1 1 1) obtenus dans les configurations PA, PE et HP.

l'oscillation vers 7875 eV est décalée vers les faibles énergies par rapport aux spectres **PA** et **HP** (Cf. trait en pointillés sur la figure 8.4). Nous en déduisons que R_{PE} doit être légèrement supérieure à R_{PA} et R_{HP} comme l'indique la formule des oscillations EXAFS $\chi(k)$ au seuil K (formule 8.6) :

$$\chi(k) = \sum_j - \frac{N_j^* |f_j(\pi)|}{kR_j^2} \exp\left(-\frac{2R_j}{\lambda(k)}\right) \exp(-2\sigma_j^2 k^2) \sin[2kR_j + 2\delta_1 + \arg(f_j(\pi))] \quad (8.6)$$

Les ajustements théoriques et les spectres expérimentaux sont présentés sur les figures 8.21, 8.22 et 8.23. Les graphes situés dans la colonne de gauche sont les oscillations EXAFS de l'expérience $\chi_{exp}(k)$ comparées à celles du modèle $\chi_{modèle}(k)$. Sur la colonne de droite sont tracés les modules de la transformée de Fourier de $k\chi(k)$. La même présentation des résultats sera utilisée par la suite. Sur les figures 8.21, 8.22 et 8.23, le plus grand désaccord théorie-expérience est obtenu avec le modèle "1 MC" de cobalt pour les 3 configurations de polarisation. L'amplitude des oscillations EXAFS est sous estimée avec ce modèle principalement dans la configuration **HP**. Pour les trois autres simulations, la détermination de celle donnant le meilleur ajustement est moins évidente.

0,5 MC	Distance 1 ^{ers} voisins $R \pm 0,01\text{\AA} \quad \sigma^2 \left(\cdot 10^{-3} \text{\AA}^2 \pm 0,5 \cdot 10^{-3} \right)$	Modèle FEFFIT
Cu(1 1 1)	$R_{PA} = 2,51 \quad \sigma^2 = 6,6$ $R_{PE} = 2,55 \quad \sigma^2 = 9,4$ $\overline{R_{HP}} = 2,53 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 2,2$	"1 MC recouverte"
Cu(1 1 1)	$R_{PA} = 2,52 \quad \sigma^2 = 4,9$ $R_{PE} = 2,55 \quad \sigma^2 = 7,6$ $\overline{R_{HP}} = 2,52 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 2,6$	"2 MC"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,51 \quad \sigma^2 = 4,5$ $\overline{R_{HP}} = 2,53 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 4,8$	"1 MC recouverte"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,51 \quad \sigma^2 = 3,5$ $\overline{R_{HP}} = 2,52 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 7,9$	"2 MC"

TAB. 8.2: Résultats d'EXAFS concernant les dépôts de 0,5 MC sur Cu(1 1 1) et Cu(001).

Nous avons donc tracé le facteur f en fonction du modèle (figure 8.5), on remarque que les meilleurs accords expérience-calcul sont obtenus pour les modèles "1 MC recouverte" et "2 MC" pour Cu(1 1 1).

De même pour 0,5 MC Co/Cu(001), on remarque que les modèles offrant les meilleurs accords sont également "1 MC recouverte" et "2 MC" (graphe 8.5). Les paramètres structuraux pour ces deux modèles sont présentés sur le tableau 8.2. Il est à noter que les valeurs des distances premiers voisins sont peu dépendantes du modèle. Les résultats obtenus avec "film épais" et "1 MC" ne sont pas présentés dans le tableau mais ils offrent également des distances comparables. Ces simulations permettent d'avoir une idée sur le type de croissance du cobalt. Rappelons que pour l'EXAFS, il est difficile d'identifier un voisin cuivre d'un voisin cobalt car ces atomes sont proches dans la classification périodique et leur amplitude de diffusion sont voisines. La différence entre le modèle "1 MC recouverte" et le modèle "2 MC" réside seulement dans la présence ou non d'atomes de cobalt en surface, en effet, dans le modèle "2 MC" dans la configuration **HP**, en moyenne $N_{HP}^* = 9$ tandis que pour le modèle "1 MC recouverte" $N_{HP}^* = 12$. Mais ces simulations ne permettent pas de savoir si les voisins dans le plan sont des atomes de cobalt ou de cuivre.

Des expériences de STM réalisées précédemment sur Co/Cu(001) confirment la validité des modèles "1 MC recouverte" et "2 MC". En effet, les références [6] [7] mettent en évidence l'existence d'un échange atomique entre le cobalt et le cuivre. Une telle inclusion de l'adsorbat dans le substrat est motivée par une énergie de surface du cobalt supérieure à celle du cuivre ce qui est simulé par le modèle "1 MC recouverte". D'autres expériences de STM [8][9] montrent que le cobalt croît couche par couche sur Cu(001) sauf pour des épaisseurs inférieures à 2 MC, pour lesquelles une croissance en bicouche est observée ce qui favoriserait le modèle "2 MC". Puisque les deux modèles les mieux appropriés pour le dépôt 0,5 MC Co/Cu(1 1 1) sont également "2 MC" et "1 MC recouverte", on en déduit que sur le substrat à marches Cu(1 1 1), nous avons des îlots de cobalt recouverts ou non de cuivre. Le mécanisme d'interdiffusion sur la surface à marches n'est pas nécessairement le même que sur le substrat plat (échange vertical) mais peut être permis par une avancée de la marche supérieure de cuivre. Cette morphologie déterminée par EXAFS est cohérente avec les images STM présentées dans le chapitre 7 où nous avons vu la formation d'îlots à cette épaisseur (figure 8.6).

Les résultats structuraux des meilleurs ajustements sont présentés dans le tableau 8.2 pour les deux substrats en fonction de l'épaisseur. Pour 0,5 MC de Co/Cu(1 1 1), on remarque une anisotropie de structure dans le plan : la liaison R_{PE} est plus grande que R_{PA} . R_{PE} est égale à $2,55 \pm 0,01$ Å. Cette valeur est identique à la distance premiers voisins du cuivre dans le plan (001). Ainsi dans la direction [110], le cobalt

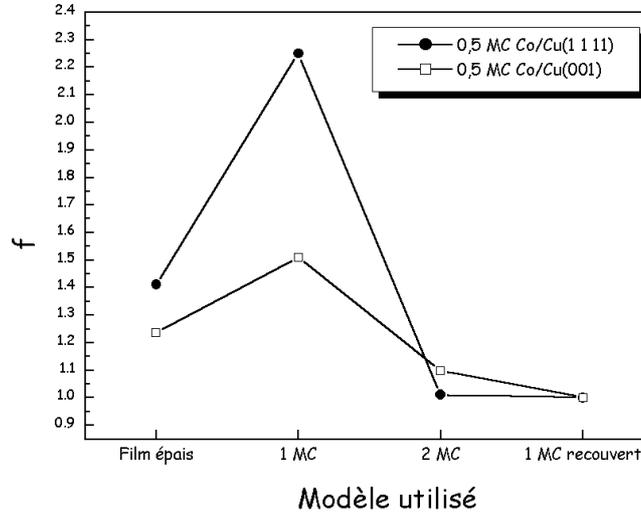


FIG. 8.5: Graphes représentant le facteur f obtenu par des ajustements de spectres théoriques de 4 modèles réalisés sur des films de 0,5 MC Co/Cu(1 1 1) et Cu(001).

est en épitaxie cohérente avec le substrat contrairement à la direction $[1\bar{1}0]$, où il relaxe légèrement. R_{PA} a la même valeur que R_{Plan} pour 0,5 MC Co/Cu(001).

Les images STM obtenues sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 1) sont assez floues (figure 8.6), cependant, on aperçoit une morphologie constituée d'îlots de taille caractéristique d'un diamètre d'environ 30 Å accrochés aux bords de marches.

Pour des îlots isolés sur une surface, on peut imaginer que le cobalt relaxe par les bords libres des îlots du fait des liaisons rompues comme indiqué sur le schéma 8.7. Ceci a été observé pour Co/Cu(001) [10][11] et nous le confirmons par EXAFS en mesurant une distance dans le plan de 2,51 Å distance inférieure à celle du cuivre. Dans le cas d'îlots isolés, la relaxation doit être identique dans les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. Or ce n'est pas le cas sur le substrat à marches, le cobalt n'est pas relaxé de manière équivalente dans les directions parallèle et perpendiculaire aux bords de marches. Un modèle simple permet d'expliquer une telle dissymétrie de relaxation sur des îlots carrés. On considère alors que le cobalt ne relaxe que le long des bords d'îlots libres non adossés au cuivre (schéma 8.8). La relaxation dans la direction $[110]$ perpendiculaire aux bords de marches s'effectue sur les atomes situés le long de L_{PA} . Tandis que celle selon $[1\bar{1}0]$ est faite sur une distance de $2L_{PE}$. Ainsi pour des îlots carrés $L_{PA} = L_{PE}$, la longueur sur laquelle se réalise la relaxation dans la direction des bords de marches est donc deux fois plus grande que celle dans la direction $[110]$. On peut conclure que les contraintes seront plus relaxées pour les liaisons R_{PA} et donc

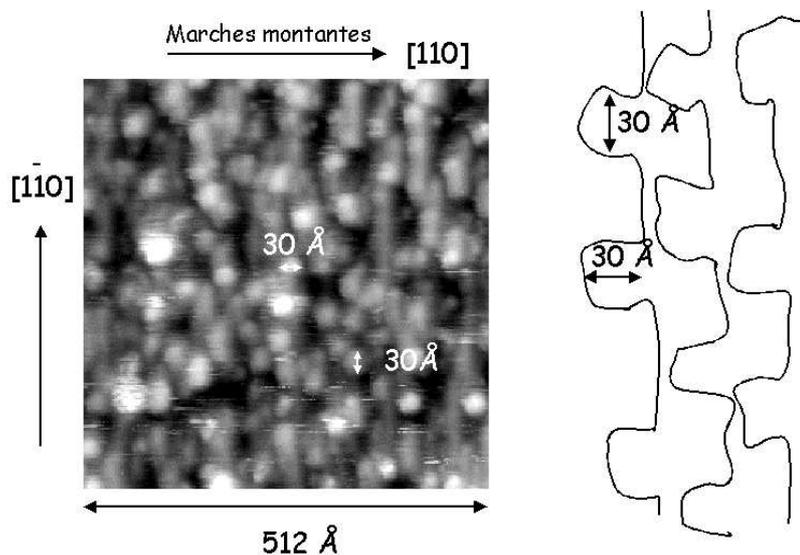


FIG. 8.6: Image STM obtenue sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 1).

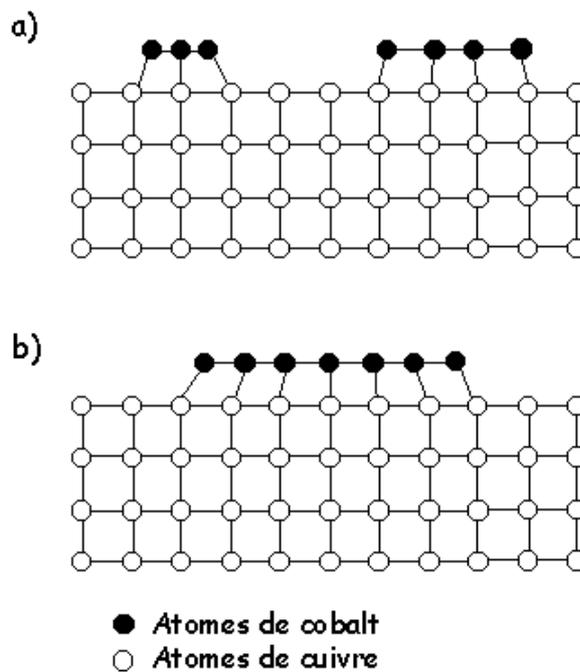


FIG. 8.7: Schéma montrant la relaxation du cobalt en fonction du taux de couverture.

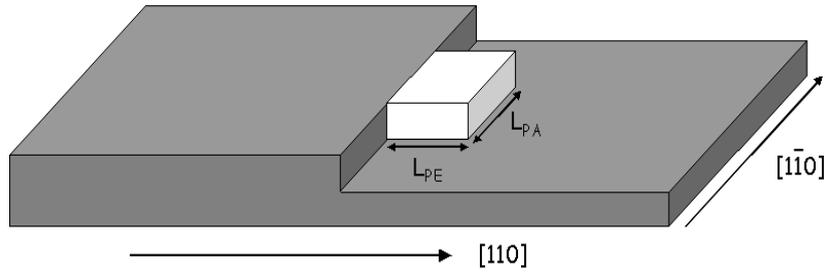


FIG. 8.8: Schéma d'un îlot de cobalt accolé à un bord de marche de cuivre.

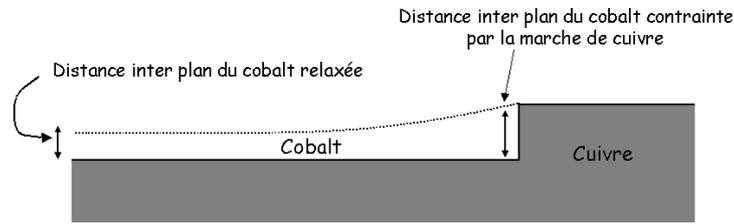


FIG. 8.9: Schéma permettant de visualiser l'éventuelle relaxation du cobalt dans la direction $[001]$.

que $R_{PA} < R_{PE}$ ce que nous observons expérimentalement (tableau 8.2).

La longueur moyenne des liaisons $\overline{R_{HP}}$ dans le modèle "1 MC recouverte" est obtenue en faisant une moyenne des liaisons hors plan cobalt-cuivre surfacique et cobalt-cuivre à l'interface, dans le modèle "2 MC", $\overline{R_{HP}} = \frac{8R_{HP}^{CoCo} + 4R_{HP}^{CoCu}}{12}$. Les distances déterminées avec FEFFIT le sont avec une précision de 0,01 Å. Pour $\overline{R_{HP}}$ utilisée pour les modèles "1 MC recouvert" et "2 MC" qui est "une moyenne" sur deux distances, sa précision est donc de $\pm 0,02$ Å. Nous trouvons pour 0,5 MC Co/Cu(001) $\overline{R_{HP}} = 2,53$ Å. Cette valeur est comparable à celle obtenue pour 0,5 MC Co/Cu(001) (tableau 8.2). La distance premiers voisins du cobalt massif est de 2,50 Å alors que celle du cuivre est de 2,55 Å. Ainsi $2,50 \text{ Å} < \overline{R_{HP}} < 2,55 \text{ Å}$, cette distance intermédiaire est probablement due à l'interdiffusion cobalt-cuivre et/ou à la présence d'atomes de cobalt au bord d'une marche de cuivre. En effet, l'atome de cobalt doit s'adapter aux atomes de cuivre dans le plan (001), mais également s'il se situe près d'une marche, les atomes de cuivre de la marche supérieure auront tendance à étirer son paramètre de maille également dans la direction $[001]$ (figure 8.9).

Dans le tableau 8.2, sont également indiqués les facteurs Debye-Waller de chacune des liaisons composant la première couche. Puisque les spectres EXAFS ont été enregistrés à 77 K, à cette température les vibrations des liaisons sont réduites et les facteurs Debye-Waller n'apportent qu'une indication sur le désordre statique du

dépôt. Plus précisément, ce facteur est la largeur de la distribution radiale des distances premiers voisins autour de l'atome central (paragraphe 3.3.5). Ces valeurs sont à comparer avec les mesures de référence effectuées sur un échantillon monocristallin de cobalt massif à 77K, pour lesquelles le facteur Debye-Waller est de $2,7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$. Nous en déduisons que sur Co/Cu(1 1 11) et notamment dans la direction perpendiculaire aux bords de marches, les facteurs Debye-Waller sont légèrement supérieurs à la référence.

8.5.1 Conclusion

Les résultats d'EXAFS de surface pour 0,5 MC de Co/Cu(1 1 11) montrent une relaxation structurale du cobalt dans la direction $[1\bar{1}0]$ ($R_{PA} = 2,51 \text{ \AA}$) tandis que selon $[110]$, l'adsorbat est en épitaxie quasi cohérente avec le cuivre ($R_{PE} = 2,55 \text{ \AA}$). Grâce aux modèles "2 MC" et "1 MC recouverte", nous avons mis en évidence la présence d'îlots à la surface d'au moins deux monocouches, le modèle "1 MC" sous estimant les amplitudes des oscillations EXAFS. Les facteurs Debye-Waller présentent également une anisotropie entre les liaisons R_{PA} et R_{PE} , la liaison R_{PE} étant plus désordonnée. La structure d'un dépôt de 0,5 MC de cobalt sur Cu(001) montre que dans le plan, la distance premiers voisins est de $2,51 \text{ \AA}$. Sur Cu(001), le cobalt est donc partiellement relaxé de manière isotrope alors que la présence des marches rend anisotrope cette relaxation sur Cu(1 1 11).

8.6 Structure des dépôts de 1 MC de Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115)

D'après les images STM observées pour 1 MC de Co/Cu(1 1 11) et sur Cu(115) (figure 7.17), le cobalt ne croît pas dans un modèle couche par couche. La surface des deux substrats est alors constituée d'îlots allongés dans la direction $[1\bar{1}0]$ vraisemblablement constitués de cobalt et de cuivre.

8.6.1 1 MC Co sur Cu(1 1 11), Cu(115) et Cu(001) déposée à 300 K

Les figures 8.10 et 8.11 présentent les spectres expérimentaux obtenus dans les trois configurations de polarisation (**PA**, **PE**, **HP**) pour 1 MC de cobalt sur Cu(1 1 11) et Cu(115). A première vue, les trois spectres **PA** et **PE** présentent des oscillations similaires et la relaxation attendue dans la direction perpendiculaire aux bords de marches si elle existe doit être peu importante sur les deux substrats. De même, les oscillations du spectre **HP** sont identiques à celles observées sur **PA** et **PE**. On peut en conclure rapidement qu'il n'existe pas d'importante anisotropie structurale dans

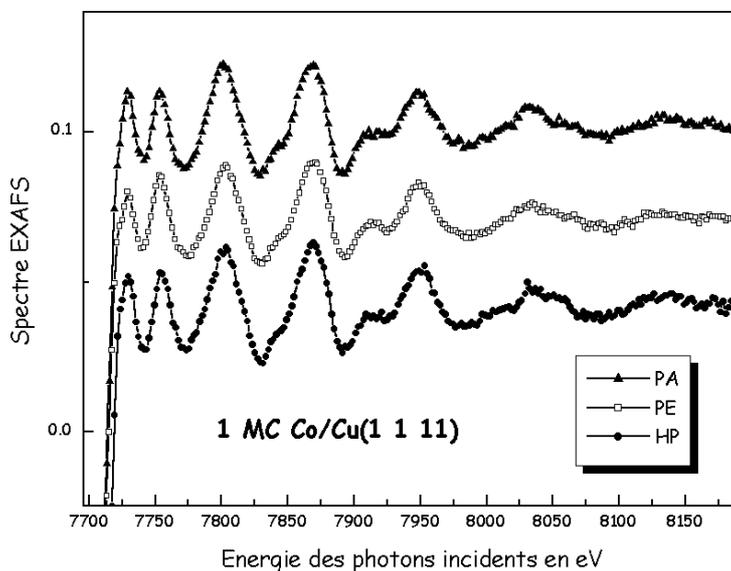


FIG. 8.10: Spectres EXAFS réalisés sur un dépôt de 1 MC de Co/Cu(1 1 1) évaporé à 300 K dans les trois configurations (PA, PE et HP).

les trois directions de polarisation $[110]$ $[1\bar{1}0]$ et $[001]$. Ainsi, les différentes distances premiers voisins sont probablement très proches.

Les ajustements théoriques et les spectres expérimentaux sont présentés sur les figures 8.24, 8.26, 8.28 pour Cu(1 1 1) et 8.25, 8.27 et 8.29 pour Cu(115). D'après les valeurs de f reportées sur le graphe 8.12, on remarque que le meilleur accord expérience-calcul pour Cu(1 1 1) est obtenu pour les modèles "2 MC" et "1 MC recouverte" comme pour 0,5 MC alors que sur Cu(115), le modèle "1 MC recouverte" offre les meilleurs résultats. Ceci montre que l'interdiffusion caractérisée par un nombre plus faible d'atomes de cobalt en surface doit être plus importante sur Co/Cu(115). Les résultats structuraux du meilleur ajustement sont regroupés dans le tableau 8.3 pour les trois substrats Cu(1 1 1), Cu(115) et Cu(001). Étant donné que la structure ne dépend pas du modèle utilisé, seuls les résultats du meilleur modèle sont représentés dans ce tableau.

Dans le plan (001), les distances premiers voisins sont les suivantes, nous avons $R_{PA} \approx R_{PE} \approx 2,53 \text{ \AA}$ pour les trois types d'échantillons. La relaxation de la maille de cobalt entre les directions $[1\bar{1}0]$ et $[110]$ est donc équivalente contrairement à ce qui était observé sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 1). Ceci peut être corrélé à la taille des îlots observés sur le dépôt de 1,2 MC Co/Cu(1 1 1) en STM (figure 7.17.a) et sur

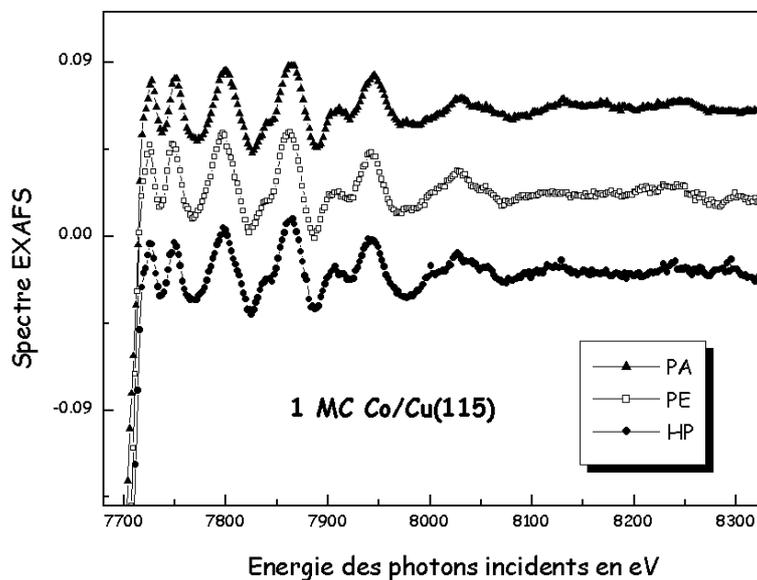


FIG. 8.11: Spectres EXAFS obtenus sur un dépôt d'une monocouche de cobalt sur Cu(115) déposée à température ambiante.

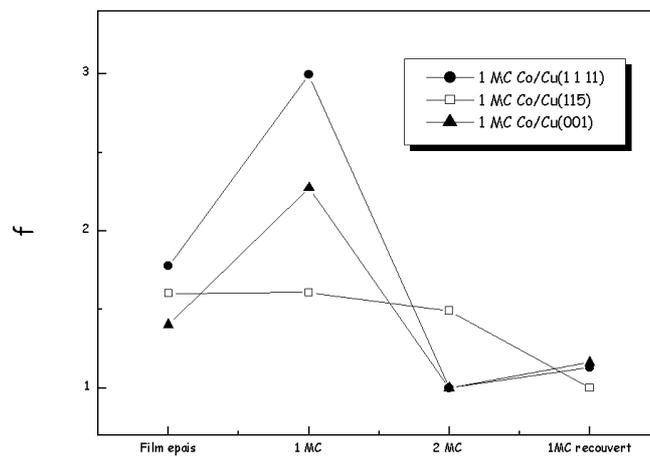


FIG. 8.12: Tracé du facteur f pour une monocouche de Co sur Cu(1 1 1), Cu(115) et Cu(001) en fonction des différents modèles théoriques utilisés.

1 MC	Distance 1 ^{ers} voisins		Modèle FEFFIT
	$R \pm 0,01\text{\AA} \quad \sigma^2 \left(.10^{-3} \text{\AA}^2 \pm 0,5.10^{-3} \right)$		
Cu(1 1 1)	$R_{PA} = 2,53$ $R_{PE} = 2,52$ $\overline{R_{HP}} = 2,52 \pm 0,02$	$\sigma^2 = 4,4$ $\sigma^2 = 4,1$ $\sigma^2 = 3,4$	"2 MC"
Cu(115)	$R_{PA} = 2,54$ $R_{PE} = 2,54$ $\overline{R_{HP}} = 2,53 \pm 0,02$	$\sigma^2 = 5,2$ $\sigma^2 = 5,6$ $\sigma^2 = 1,5$	"1 MC recouverte"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,53$ $\overline{R_{HP}} = 2,53 \pm 0,02$	$\sigma^2 = 4,8$ $\sigma^2 = 4,2$	"2 MC"

TAB. 8.3: Résultats d'EXAFS concernant les dépôts de 1 MC sur Cu(1 1 1) , Cu(115) et Cu(001)

Cu(115) (figure 7.17.b). En effet, pour une telle épaisseur, les dimensions des îlots sont d'environ 65 Å dans la direction $[1\bar{1}0]$ et de 40 Å selon $[110]$ pour Cu(1 1 1) et respectivement 65 Å et 35 Å sur Cu(115). Sur les deux substrats, nous avons donc des tailles d'îlots moyennes assez proches. Ainsi en supposant de nouveau que la relaxation du cobalt se produit le long des bords d'îlots libres, alors cette relaxation s'effectue sur une distance de 70 Å pour R_{PE} et de 80 Å (soit 40×2) pour R_{PA} pour Cu(1 1 1). La distance sur laquelle se fait la relaxation des liaisons R_{PA} et R_{PE} est quasiment équivalente, on en déduit par conséquent que la relaxation dans ces deux directions du plan doit être identique, ce qui est vérifié expérimentalement car $R_{PA} \approx R_{PE}$ pour les deux substrats. De plus, les distances dans le plan sont égales à celles trouvées sur 1 MC Co/Cu(001) (tableau 8.3). Les contraintes du cobalt sont relaxées sur Cu(001) de manière identique à Co/Cu(1 1 1) et Co/Cu(115) ainsi on peut conclure que la taille des îlots sur le substrat sans marche doit être équivalente à celle des substrats vicinaux. Il est à noter cependant que la relaxation observée pour 1 MC est moins importante que pour 0,5 MC (2,51 Å), ceci est probablement lié à la taille plus grande des îlots à 1 MC.

Sur les trois échantillons, nous observons $\overline{R_{HP}} \approx 2,53 \pm 0,02$ Å. Soit une longueur quasiment égale à celle mesurée dans le plan et plus grande que celle du cobalt massif ($R^{Co} = 2,50$ Å). Les facteurs Debye-Waller indiquent que la structure est plus ordonnée qu'à 0,5 MC et aucune anisotropie n'est observée entre les liaisons R_{PA} et R_{PE} pour les substrats vicinaux. Nous pouvons donc conclure que la structure d'une

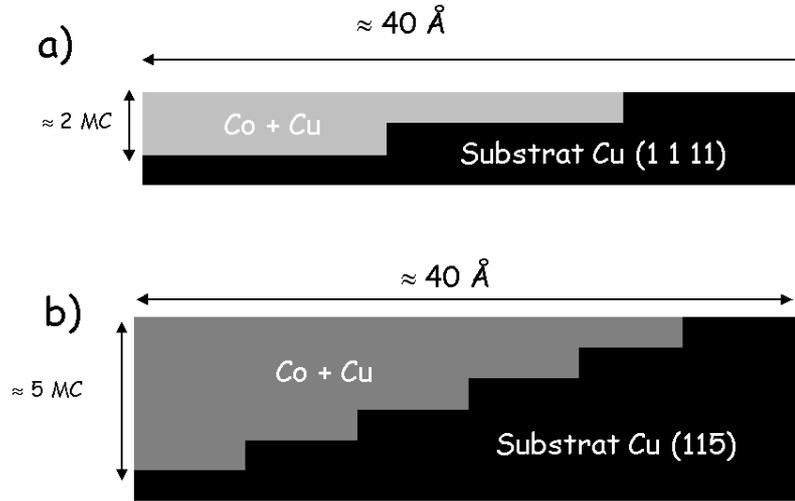


FIG. 8.13: Figures a et b schématisant les îlots rencontrés respectivement sur 1 MC Co/Cu(1 1 1) et 1 MC Co/Cu(115).

monocouche de cobalt déposée sur les trois substrats est presque identique. Nous trouvons que les distances dans le plan sont isotropes et légèrement inférieures à celle du cuivre massif. Nous sommes dans une configuration d'épitaxie non pseudomorphe due à la présence des îlots qui tendent à relaxer le cobalt vers son paramètre de maille massif. Les mesures d'EXAFS montrent donc clairement l'existence des îlots.

Quant à la distance hors plan qui est légèrement supérieure à celle du cobalt massif ($R_{HP}^{Co} = 2,50 \text{ \AA}$), ceci laisse à penser que les îlots sont également constitués de cuivre et/ou qu'un grand nombre d'atomes de cobalt sont situés aux bords des marches de cuivre (figure 8.9). Le fait que sur 1 MC Co/Cu(115), le modèle "1 MC recouverte" soit le plus proche de l'expérience semble montrer qu'il y a moins d'atomes de cobalt en surface et donc que l'interdiffusion sur Cu(115) est plus importante que sur les autres substrats. Cette interdiffusion cobalt-cuivre plus grande sur le substrat présentant les plus petites terrasses est également observée sur les images réalisées en STM (figure 7.17). En effet, sur les deux substrats Cu(1 1 1) et Cu(115), nous avons observé des îlots de taille comparable ($40 \times 70 \text{ \AA}^2$) soit dans un cas trois marches de large pour Cu(1 1 1) soit six marches de large pour Cu(115). Ceci laisse à penser que sur Cu(115), les îlots sont plus hauts (figure 8.13.a et 8.13.b). De plus, comme la densité d'îlots est identique sur les deux échantillons pour ce taux de couverture, nous en déduisons que l'interdiffusion est par conséquent plus importante sur Cu(115).

1 MC	Distance 1 ^{ers} voisins $R \pm 0,01\text{\AA} \quad \sigma^2 (10^{-3} \text{\AA}^2 \pm 0,5 \cdot 10^{-3})$	Modèle FEFFIT
Cu(1 1 1) 300 K	$R_{PA} = 2,53 \quad \sigma^2 = 4,4$ $R_{PE} = 2,52 \quad \sigma^2 = 4,1$ $\overline{R_{HP}} = 2,52 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 3,4$	"2 MC"
Cu(1 1 1) 262 K	$R_{PAPE} = 2,53 \quad \sigma^2 = 5,5$ $\overline{R_{HP}} = 2,52 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 4,7$	"2 MC"
Cu(1 1 1) 77 K	$R_{PAPE} = 2,51 \quad \sigma^2 = 7,5$ $\overline{R_{HP}} = 2,52 \pm 0,02 \quad \sigma^2 = 6,7$	"2 MC"

TAB. 8.4: Résultats d'EXAFS concernant les dépôts de 1 MC sur Cu(1 1 1) déposés à 300K, 262 K et 77K.

8.6.2 1 MC Co/Cu(1 1 1) évaporée à différentes températures

Nous avons également réalisés des dépôts d'une monocouche de cobalt en refroidissant le substrat à 262 K et à 77 K. Dans les deux cas, les mesures d'EXAFS de surface effectuées sur ces deux dépôts ont été réalisées à 77 K. Les résultats structuraux sont présentés dans le tableau 8.4. Nous avons enregistré les spectres EXAFS seulement selon deux configurations de polarisation : l'orientation **HP** et une nouvelle configuration notée **PAPE** pour laquelle la polarisation est dans la direction [100]. Dans cette dernière configuration, les liaisons R_{PA} et R_{PE} contribuent de manière identique au signal EXAFS. Nous obtiendrons donc une distance premiers voisins dans le plan R_{PAPE} égale à $\frac{R_{PA}+R_{PE}}{2}$. L'orientation **PAPE** a été utilisée car lorsque l'échantillon est à une température de 77 K, son azimut ne peut pas être modifié, par conséquent il n'est pas possible de passer de la configuration **PA** à la configuration **PE**. L'orientation **PAPE** est donc un compromis entre les positions **PA** et **PE**. On obtient comme valeur $R_{PAPE}(262 \text{ K}) = 2,53 \text{ \AA}$ et $R_{PAPE}(77 \text{ K}) = 2,51 \text{ \AA}$ à comparer avec $R_{PAPE}(300 \text{ K}) = 2,53 \text{ \AA}$. Pour la distance hors plan moyenne, on trouve $\overline{R_{HP}}(262 \text{ K}) = \overline{R_{HP}}(77 \text{ K}) = 2,52 \text{ \AA}$ ($\overline{R_{HP}}(300 \text{ K}) = 2,52 \pm 0,02\text{\AA}$).

Une hypothèse simple permet de fournir une explication sur l'évolution de la structure en fonction de la température du substrat pendant l'évaporation. Aux faibles températures, la mobilité des atomes de cuivre est réduite. Ainsi le cobalt ne doit plus être mélangé au cuivre comme le permettait à température ambiante l'ondulation des marches. Le cobalt a donc plus de voisins cobalt et moins de voisins cuivre dans le

plan (001). De plus il aura tendance à former des îlots de plus petite taille du fait de la mobilité réduite des atomes quand la température diminue. Par conséquent les distances premiers voisins dans le plan vont tendre vers 2,50 Å (distance premiers voisins dans la structure du cobalt massif) plutôt que vers 2,55 Å (distance premiers voisins du cuivre). Cette diminution des longueurs de liaisons dans le plan n'est observée qu'à partir de 77 K où $R_{PAPE}(77\text{ K}) = 2,51\text{ Å}$ tandis que $R_{PAPE}(262\text{ K}) \approx R_{PE}(300\text{ K}) \approx R_{PA}(300\text{ K}) \approx 2,53\text{ Å}$. La distance hors plan quant à elle ne varie pas avec la température d'évaporation.

Nous concluons donc que seule l'évaporation à 77 K modifie légèrement la structure du dépôt de cobalt entraînant une faible variation de la distance dans le plan avec une augmentation du facteur Debye-Waller, mais que l'ajustement des données expérimentales se fait encore avec le modèle "2 MC". Nous pouvons donc penser que pour de telles températures (262 K et 77 K), la mobilité des atomes de cobalt et de cuivre est simplement réduite et non stoppée.

8.6.3 Conclusion

La structure des films de cobalt pour un taux de couverture d'une monocouche varie peu d'un substrat à un autre. L'utilisation de FEFFIT avec différents modèles théoriques nous a permis une analyse plus fine des résultats structuraux et de valider la morphologie des dépôts observés grâce à la microscopie à effet tunnel (présence d'îlots en surface plus épais sur Cu(115) que sur les autres substrats). Par contre, d'après le graphe 8.14 présentant les spectres Auger dans deux gammes d'énergie obtenus pour le dépôt d'une monocouche sur Cu(001), Cu(1 1 1) et Cu(115), aucune différence notable n'est à signaler. Les spectres dans la gamme dite hautes énergies sont identiques, les rapports entre le pic 920 eV du cuivre et celui à 716 eV du cobalt sont semblables pour les trois types de substrats. Pour la gamme basses énergies plus sensible à la surface, l'amplitude du pic du cuivre situé à 60 eV devant celle du cobalt (55 eV) ne varie pas entre Co/Cu(001) et Co/Cu(115). Pour les basses énergies du Cu(1 1 1), ce rapport est légèrement supérieur, le pic du cobalt est plus grand ce qui signifie que la proportion de cobalt en surface est légèrement supérieure. La présence des marches et de leurs oscillations dès les premiers stades de croissance favorisent à l'interface un mélange du cobalt et du cuivre plus important que sur Co/Cu(001). En effet l'interdiffusion sur Co/Cu(001) est réalisée uniquement par des échanges verticaux entre les atomes du substrat et de l'adsorbat, elle est donc moins aisée que sur les surfaces à marches. La spectroscopie Auger ne permet donc pas de conclure et de différencier les morphologies différentes de Co/Cu(001) et Co/Cu(11n).

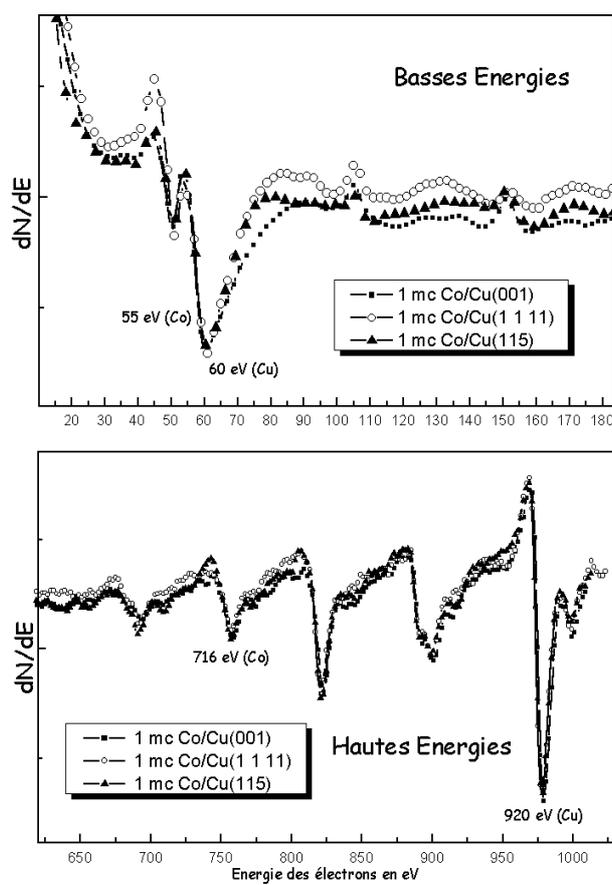


FIG. 8.14: Spectres Auger obtenus pour 1 MC de cobalt déposée sur Cu(001), Cu(1 1 1) et Cu(115). Les graphes en haut sont ceux obtenus à basses énergies [20-180] eV et les tracés en bas sont ceux à hautes énergies [600-1000] eV.

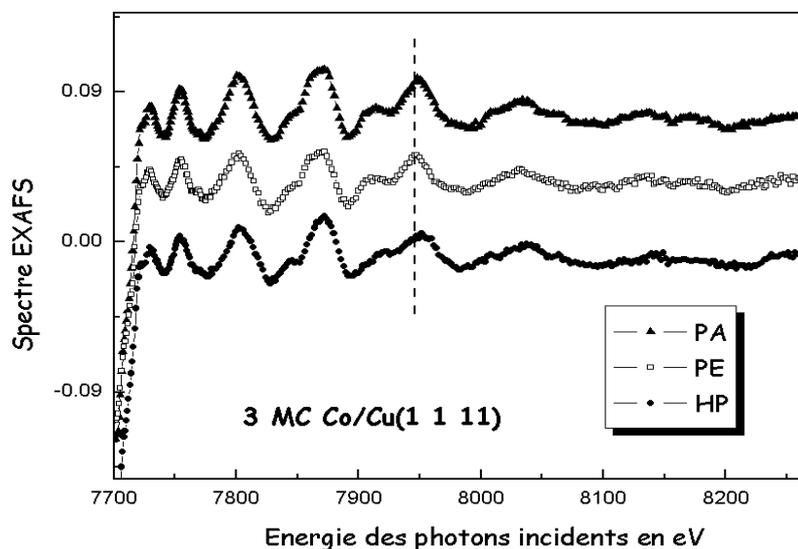


FIG. 8.15: Spectres EXAFS réalisés sur un dépôt de 3 MC de Co/Cu(1 1 1) dans les trois configurations (PA, PE et HP). Le cobalt est évaporé à température ambiante.

8.7 Structure des dépôts épais de Co/Cu(1 1 1) et Co/Cu(115)

Cette partie contient la présentation et l'analyse structurale des dépôts de cobalt réalisées sur Cu(1 1 1) et Cu(115) pour des épaisseurs comprises entre 3 et 8 MC. Pour ces dépôts, nous avons utilisé un unique modèle théorique celui du "film épais". Ce modèle est constitué d'un film d'épaisseur infinie de cobalt.

8.7.1 3 à 8 MC de cobalt sur Cu(1 1 1)

Les spectres EXAFS obtenus pour les dépôts de 3 à 8 MC de cobalt déposés sur Cu(1 1 1) sont représentés sur les figures 8.15, 8.16 et 8.17. Nous observons une anisotropie sur les spectres EXAFS dans la configuration **HP**, l'oscillation située vers 7950 eV est décalée vers les plus hautes énergies. Sur les figures 8.30, 8.32 et 8.34 sur lesquelles sont tracées les modules des transformées de Fourier, l'anisotropie est nettement marquée sur les couches de voisins éloignés situées vers 4 et 5 Å. Les spectres entre les configurations **PA** et **PE** sont identiques alors que le spectre en configuration **HP** est différent ce qui entraîne une distance hors plan vraisemblablement différente

de R_{PA} et R_{PE} . Les résultats issus des ajustements théorie-expérience sont regroupés dans le tableau 8.5. Dans le plan (001), $R_{PA} \approx R_{PE} \approx 2,55 \text{ \AA}$ pour 3 à 8 MC. Cette distance étant celle du cuivre, le cobalt ne relaxe donc plus pour ces épaisseurs contrairement à ce qui était observé pour 1 MC de Co/Cu(1 1 11). Les images STM montrent que dès 3 MC, les îlots présents à la surface sont plus grands et par conséquent moins propices à relaxer les contraintes. Il est à noter que les distances dans le plan sont identiques à celle mesurée pour des épaisseurs comparables de cobalt sur Cu(001).

La distance hors plan quant à elle varie avec la quantité de cobalt évaporée. Pour 3 et 5 MC, R_{HP} est égale à $2,52 \text{ \AA}$ valeur légèrement supérieure à celle mesurée sur Co/Cu(001). Enfin pour le dépôt le plus épais (8 MC), la distance hors plan sur Cu(1 1 11) tend vers celle mesurée sur le cuivre plat ($2,50 \text{ \AA}$).

P. Le Fèvre grâce à des mesures d'EXAFS de surface [3][4] détermine dès 3 MC Co/Cu(001), que la structure du cobalt est tétragonale avec $R_{Plan} = 2,55 \text{ \AA}$ et $R_{HP} = 2,50 \text{ \AA}$ et qu'elle est compatible avec une déformation élastique de la maille de cobalt. Dans notre cas, $R_{HP} > 2,50 \text{ \AA}$, pour 3 et 5 MC, le cobalt est alors fortement contraint dans la direction perpendiculaire à la surface. Le fait que la distance hors plan observée sur Cu(1 1 11) soit légèrement supérieure à celle mesurée sur Cu(001) peut s'expliquer par le nombre plus important de voisins cuivre à l'interface dans le plan (001). En effet, les images STM montrent sur les substrats vicinaux la forte mobilité du substrat et l'ondulation des bords de marches dès les premiers stades de croissance (chapitre 7). Les bords de marches viennent entourer ainsi les atomes de cobalt. "Emprisonné" par les atomes de cuivre, le cobalt aura tendance à étirer son paramètre de maille dans la direction [001] pour s'adapter à celui du substrat (figure 8.9). Pour des épaisseurs plus grandes, le nombre d'atomes de cuivre en moyenne autour d'un atome de cobalt diminue, ainsi le cobalt sera moins contraint par le substrat.

L'EXAFS fournit des distances moyennes sur l'épaisseur sondée. La variation de R_{HP} avec l'épaisseur du film laisse penser que la distance hors plan est plus grande à l'interface ($2,52 \text{ \AA}$) que celle mesurée à la surface ($2,50 \text{ \AA}$). Nous montrons ainsi le rôle important joué par l'interface cobalt-cuivre différent entre un substrat vicinal et le cuivre (001). La distance hors plan tend vers $2,50 \text{ \AA}$ à partir de 8 MC sur Cu(1 1 11) alors que pour le cuivre plat, elle atteint cette valeur dès 3 MC.

Les facteurs Debye-Waller varient peu en fonction de l'épaisseur. Sur Cu(1 1 11), ils sont légèrement supérieurs à celui du cobalt massif qui est égal à $2,7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$ ce qui indiquent un léger désordre statique.

Les ajustement théoriques sont tracés sur les figures 8.30, 8.32 et 8.34 et comparés avec l'expérience. Ces graphes montrent que les calculs sont en très bon accord avec l'expérience aussi bien pour la couche de premiers voisins que pour les couches plus éloignées. La théorie reproduit assez bien l'anisotropie présente entre les configurations

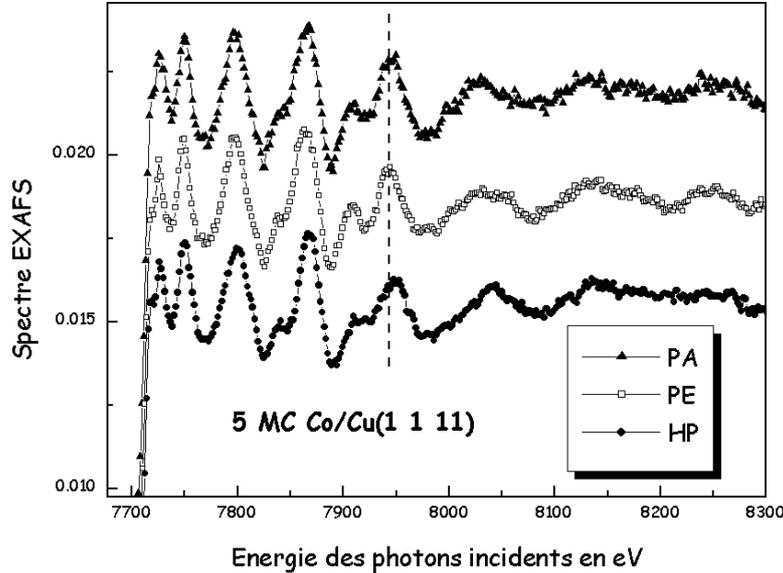


FIG. 8.16: Spectres EXAFS réalisés sur un dépôt de 5 MC de Co/Cu(1 1 1) dans les trois configurations.

PA, PE et HP. Ainsi FEFFIT, en considérant la diffusion multiple et les couches de voisins lointains, confirme que la structure adoptée par le cobalt est tétragonale à faces centrées jusqu'aux voisins les plus éloignés, contrairement à la méthode de dépouillement classique qui ne traitait que les premiers voisins et ne permettait pas de modéliser les trois polarisations simultanément.

En conclusion, nous avons montré que pour 8 MC, le cobalt sur Cu(1 1 1) était dans une structure tétragonale à faces centrées identique aux dépôts réalisés sur Cu(001). Les dépôts de 3 à 5 MC de cobalt montrent quant à eux que la structure du cobalt est différente de celle observée sur Cu(001), la distance hors plan y est légèrement plus élevée. La principale hypothèse de ce changement de structure est due au fait que sur la surface vicinale une interdiffusion entre les atomes du substrat et de l'adsorbat a lieu à cause de l'ondulation des marches générée par la grande mobilité des atomes de cuivre le long des bords de marches.

On note également que le fait d'évaporer sur les surfaces à marches n'engendre pas d'anisotropie structurale dans le plan (001). Ainsi la présence des marches n'a de conséquence que sur l'interdiffusion à l'interface mais ne provoque pas de relaxation structurale anisotrope dans le plan.

Les images de STM sur un dépôt de 8 MC montrent que le cobalt a tendance à

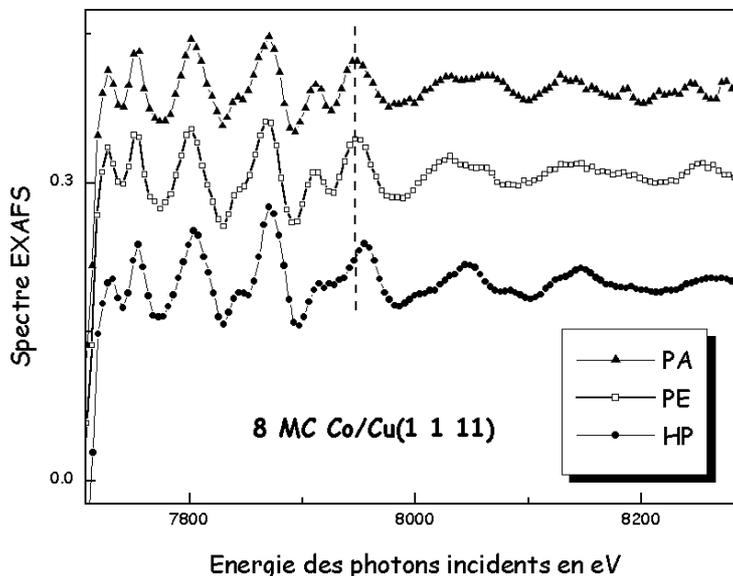


FIG. 8.17: Spectres EXAFS réalisés sur un dépôt de 8 MC Co/Cu(1 1 1).

former des terrasses doubles séparées par des marches de deux atomes de haut. Cette morphologie différente de celle du substrat de cuivre initial est probablement causée par la structure du cobalt qui est tétragonale tandis que la maille de cuivre est cubique. Le cobalt croît en épitaxie cohérente sur le cuivre et les contraintes générées alors dans le film magnétique par le substrat doivent modifier l'interaction entre les marches.

8.7.2 3 MC à 8 MC de Co sur Cu(115)

Les spectres EXAFS obtenus pour les épaisseurs de cobalt comprises entre 3 et 8 MC sur Cu(115) sont présentés sur les figures 8.18, 8.19 et 8.20. Les spectres, obtenus pour les dépôts de 3 à 5 MC d'adsorbat, présentent des oscillations semblables, nous pouvons conclure à première vue que les distances premiers voisins dans le plan et hors plan sont quasi identiques. Puisque que pour 3 et 5MC, aucune anisotropie n'est observée entre les distances R_{PA} et R_{PE} nous avons enregistré les spectres de 8 MC Co/Cu(115) selon la configuration **PAPE**. Nous obtenons une distance moyenne dans le plan. Pour ce dépôt, l'anisotropie entre les configurations **PAPE** et **HP** est comparable à celle observée sur 8 MC Co/Cu(1 1 1). Les transformées de Fourier confirment cette anisotropie pour les voisins éloignés 8.31, 8.33 et 8.35.

Nous avons regroupé les résultats structuraux dans le tableau 8.5. Dans le plan

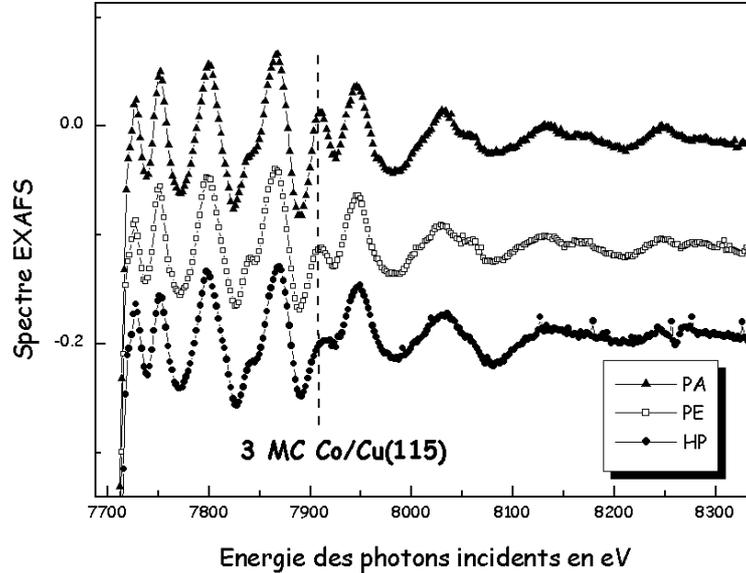


FIG. 8.18: Spectres EXAFS obtenus sur un dépôt de 3 MC de cobalt sur Cu(115) déposées à température ambiante.

pour toutes les épaisseurs de cobalt, R_{PA} et R_{PE} sont égales mais légèrement inférieures à la distance premiers voisins du cuivre (2,55 Å). Pour 3 et 5 MC, nous avons une distance dans le plan égale à 2,53 Å et pour 8 MC, cette distance tend vers celle du cuivre. Le fait que pour les épaisseurs de 3 et 5 MC, le cobalt ne soit pas en épitaxie cohérente, est probablement lié à 3 MC à la présence d'îlots (image 7.21) plus déconnectés que sur Cu(1 1 1) et au fait qu'à 5 MC (image 7.22) le film possède des trous. Ces derniers tendent à relaxer les contraintes exercées sur le cobalt par le cuivre. A 8 MC, l'adsorbat est en épitaxie cohérente sur le substrat avec une structure identique à celle observée sur Cu(1 1 1) et sur Cu(001) pour la même épaisseur. La faible valeur du facteur Debye-Waller σ_{PAPE}^2 mesurée sur 8 MC Co/Cu(115) indique que le film est très bien ordonné.

En ce qui concerne les distances hors plan à 3 et 5 MC, elles sont proches des distances dans le plan, la structure du cobalt n'est donc pas tétragonale comme ce qui est observé sur Cu(1 1 1). A 3 MC, la structure du cobalt est complètement isotrope. Il est à noter que pour ces épaisseurs (3 et 5 MC), la distance hors plan reste supérieure à celle observée sur Co/Cu(001), probablement à cause de l'interdiffusion générée par la présence des marches. A 8 MC, la structure du cobalt tend vers celle observée sur Co/Cu(001) et Co/Cu(1 1 1).

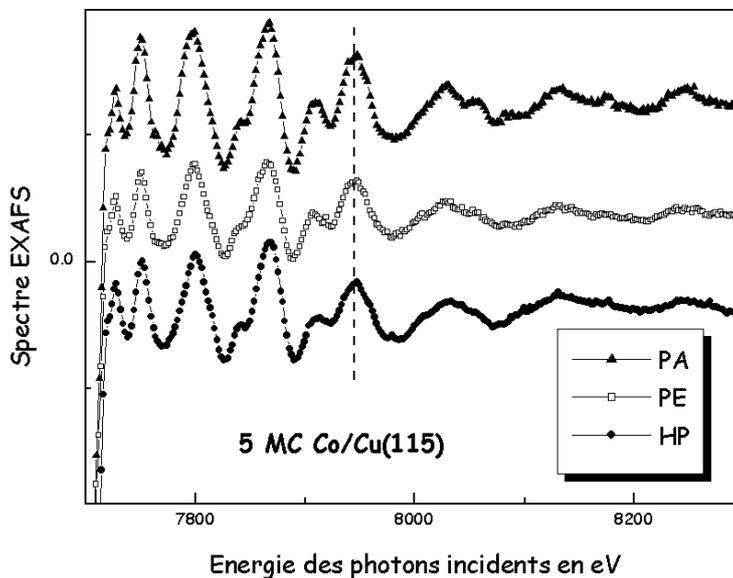


FIG. 8.19: Spectres EXAFS réalisés sur un dépôt de 5 MC de Co déposées sur Cu(115).

La différence majeure entre les dépôts effectués sur Cu(115) et Cu(1 1 1) est que dans le cas du substrat présentant les plus petites terrasses les distances dans le plan varient d'avantage avec l'épaisseur. Cette évolution des longueurs R_{PA} et R_{PE} en fonction de la quantité de cobalt est liée à la présence d'îlots plus importante sur Cu(115). Sur cette surface, les îlots coalescent à des épaisseurs plus grandes que sur Cu(1 1 1), cette morphologie est plus propice pour relaxer les contraintes. De plus, la présence des trous à 5 MC contribue également à relaxer le cobalt.

En conclusion, la structure des dépôts de cobalt de 3 à 5 MC sur Cu(115) est cubique à faces centrées et se "tétragonalise" vers 8 MC. Aucune anisotropie structurale n'est observée dans le plan (001). Le modèle "film épais" offre un bon accord avec l'expérience pour la couche de premiers voisins et celles plus éloignées (figures 8.31, 8.33 et 8.35). De même que sur Cu(1 1 1), la structure tétragonale est vraisemblablement à l'origine du facettage observé sur les images STM.

8.8 Structure des films recouverts

Nous avons également étudié la structure des dépôts de 5 MC de cobalt sur Cu(1 1 1) et sur Cu(115) recouverts par 10 MC de cuivre. Le but de cette étude était de

3 MC	Distance 1 ^{ers} voisins		Modèle FEFFIT
	$R \pm 0,01\text{\AA}$	$\sigma^2 \left(\cdot 10^{-3} \pm 0,5 \cdot 10^{-3} \text{\AA}^2 \right)$	
Cu(1 1 11)	$R_{PA} = 2,56$ $R_{PE} = 2,56$ $R_{HP} = 2,52$	$\sigma^2 = 4,9$ $\sigma^2 = 4,1$ $\sigma^2 = 3,3$	"film épais"
Cu(115)	$R_{PA} = 2,54$ $R_{PE} = 2,53$ $R_{HP} = 2,53$	$\sigma^2 = 3,5$ $\sigma^2 = 3,4$ $\sigma^2 = 5,6$	"film épais"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,55$ $R_{HP} = 2,50$	$\sigma^2 = 1,2$ $\sigma^2 = 3,3$	Ref. [3]
5 MC			
Cu(1 1 11)	$R_{PA} = 2,56$ $R_{PE} = 2,55$ $R_{HP} = 2,52$	$\sigma^2 = 3,0$ $\sigma^2 = 3,5$ $\sigma^2 = 3,9$	"film épais"
Cu(115)	$R_{PA} = 2,53$ $R_{PE} = 2,53$ $R_{HP} = 2,52$	$\sigma^2 = 4,7$ $\sigma^2 = 2,9$ $\sigma^2 = 4,4$	"film épais"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,55$ $R_{HP} = 2,50$	$\sigma^2 = 1,2$ $\sigma^2 = 3,3$	Ref. [3]
8 MC			
Cu(1 1 11)	$R_{PA} = 2,55$ $R_{PE} = 2,55$ $R_{HP} = 2,51$	$\sigma^2 = 4,5$ $\sigma^2 = 4,1$ $\sigma^2 = 2,9$	"film épais"
Cu(115)	$R_{PAPE} = 2,54$ $R_{HP} = 2,51$	$\sigma^2 = 1,7$ $\sigma^2 = 4,5$	"film épais"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,55$ $R_{HP} = 2,50$	$\sigma^2 = 1,8$ $\sigma^2 = 2,8$	Ref. [3]

TAB. 8.5: Résultats d'EXAFS concernant les dépôts de 3 à 8 MC de cobalt sur Cu(1 1 11), Cu(115) et Cu(001).

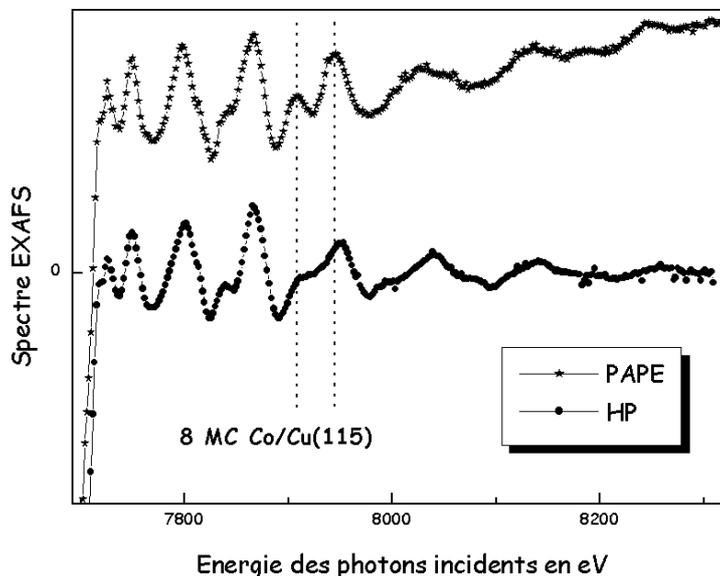


FIG. 8.20: Spectres EXAFS réalisés sur un dépôt de 8 MC Co/Cu(115).

caractériser précisément la structure des films recouverts qui avaient été étudié en Kerr *ex situ* (paragraphe 6.4) et de montrer si la couverture du film par du cuivre changeait la structure du cobalt comme cela avait été observé sur Fe/Cu(001) [12]. Les dépôts ont été réalisés à 300 K et les spectres enregistrés à 77 K. Les deux configurations de polarisation utilisées sont **PAPE** et **HP**.

Les résultats structuraux sont regroupés dans le tableau 8.6. Il est à noter que les distances premiers voisins sont quasi identiques à celles des films de cobalt non recouverts pour une quantité de 5 MC d'adsorbat évaporé. Les valeurs des facteurs Debye-Waller sont comparables à ceux des films non recouverts. Le cobalt reste en épitaxie cohérente sur le cuivre dans une structure tétragonale. La couverture du film de cobalt par le cuivre ne modifie donc pas la structure du cobalt.

8.9 Conclusion

Afin de clore ce chapitre consacré à la structure des dépôts de cobalt en fonction de leur épaisseur, on peut remarquer la grande importance du couplage de la microscopie à effet tunnel qui donne accès à la morphologie et de l'EXAFS qui informe sur l'environnement des atomes de cobalt. En effet, les images obtenues en STM nous ont permis

10 MC Cu/5 MC Co/Cu(11n)	Distance 1 ^{ers} voisins	
	$R \pm 0,01 \text{ \AA}$	$\sigma^2 (10^{-3} \pm 0,5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2)$
Cu(1 1 1) 300 K	$R_{PAPÉ} = 2,55$ $R_{HP} = 2,51$	$\sigma^2 = 3,9$ $\sigma^2 = 4,9$
Cu(115) 300 K	$R_{PAPÉ} = 2,54$ $R_{HP} = 2,51$	$\sigma^2 = 4,5$ $\sigma^2 = 5,1$

TAB. 8.6: Résultats d'EXAFS concernant les dépôts de 5 MC sur Cu(1 1 1) et Cu(115) déposés à 300K recouverts de 10 MC de cuivre.

de mettre en évidence la forte mobilité du cuivre présente dès les premiers stades de croissance et ainsi de modéliser l'influence de cuivre sur la structure du cobalt grâce à FEFF6 et FEFFIT. Sans images STM, l'analyse des résultats EXAFS aurait été bien moins riche.

De l'analyse des données structurales, on note que pour les tous premiers stades de croissance (0,5 à 1 MC) la morphologie en îlots permet une plus grande relaxation du cobalt dans le plan pour les deux substrats. La distance hors plan est un indicateur permettant de mesurer l'importance de l'interdiffusion cobalt-cuivre. En effet, si le cobalt est noyé dans la matrice cuivre, la distance hors plan de l'adsorbat aura tendance à tendre vers celle du substrat (i.e. 2,55 Å). Nous avons montré que la distance hors plan reste légèrement plus élevée sur Cu(115) et Cu(1 1 1) que sur Cu(001) quand l'épaisseur augmente, ceci peut être relié à l'interdiffusion plus grande rencontrée sur les surfaces vicinales. Pour les dépôts plus épais, le cobalt tend vers une structure tétragonale à faces centrées proche de celle observée sur le cuivre plat (001) avec une distance premiers voisins dans le plan quasi identique à celle des atomes de cuivre. Nous n'avons pas observé d'anisotropie structurale dans le plan sauf pour 0,5 MC Co/Cu(1 1 1). Ainsi, l'hypothèse souvent utilisée d'une anisotropie structurale dans le plan est fautive pour expliquer l'anisotropie uniaxiale magnétique. Le fait d'évaporer le cobalt sur d'étroites terrasses ne modifie pas l'épitaxie du cobalt sur le cuivre. Dès 1 MC, les éventuelles relaxations de structure dues aux bords de marches ne sont pas assez grandes pour être détectées par EXAFS, contrairement aux échantillons découpés par la méthode de la scie atomique [1].

L'utilisation du logiciel FEFFIT utilisant la diffusion multiple, permet de simuler les oscillations EXAFS de la première couche de voisins et des atomes plus éloignés et ainsi de valider la structure pour les couches les plus éloignées et d'apporter selon les modèles utilisés des informations concernant la morphologie du dépôt.

Pour tous les stades de croissance de 0,5 MC à 8 MC et sur les deux substrats à marches, il est à noter que les facteurs Debye-Waller σ^2 sont légèrement supérieurs à celui mesuré sur un échantillon de cobalt massif monocristallin à 77K ($\sigma^2 = 2,7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^2$). Ce facteur σ^2 qui comporte surtout à cette température (77 K) une information sur le désordre statique environnant le cobalt montre que l'adsorbat croît sur une surface vicinale dans une structure cristallographique assez peu désordonnée.

8.10 Annexe

Dans cette annexe sont présentés les spectres expérimentaux obtenus pour les différentes configurations de polarisation ainsi que leur transformée de Fourier. Sont superposés aux graphes expérimentaux, les spectres théoriques (calculés grâce à FEFF6 et FEFFIT) offrant le meilleur accord avec les mesures. Dans la colonne de gauche sont tracées les oscillations EXAFS expérimentales $\chi_{\text{expérimental}}(k)$ et théoriques $\chi_{\text{théorique}}(k)$ et dans celle de droite le module de la transformée de Fourier de $k\chi(k)$.

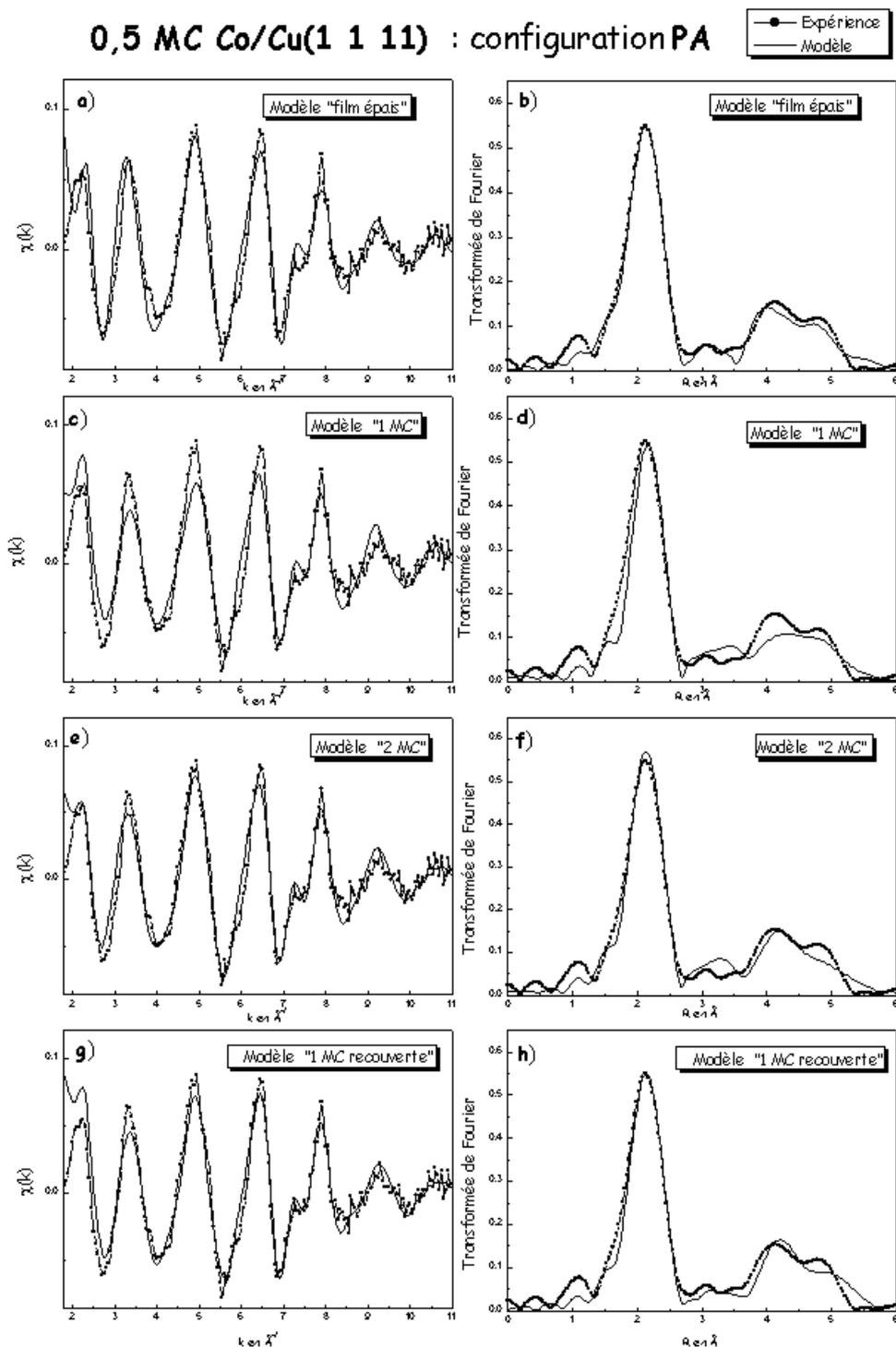


FIG. 8.21: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration PA sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 9,5 \AA^{-1} .

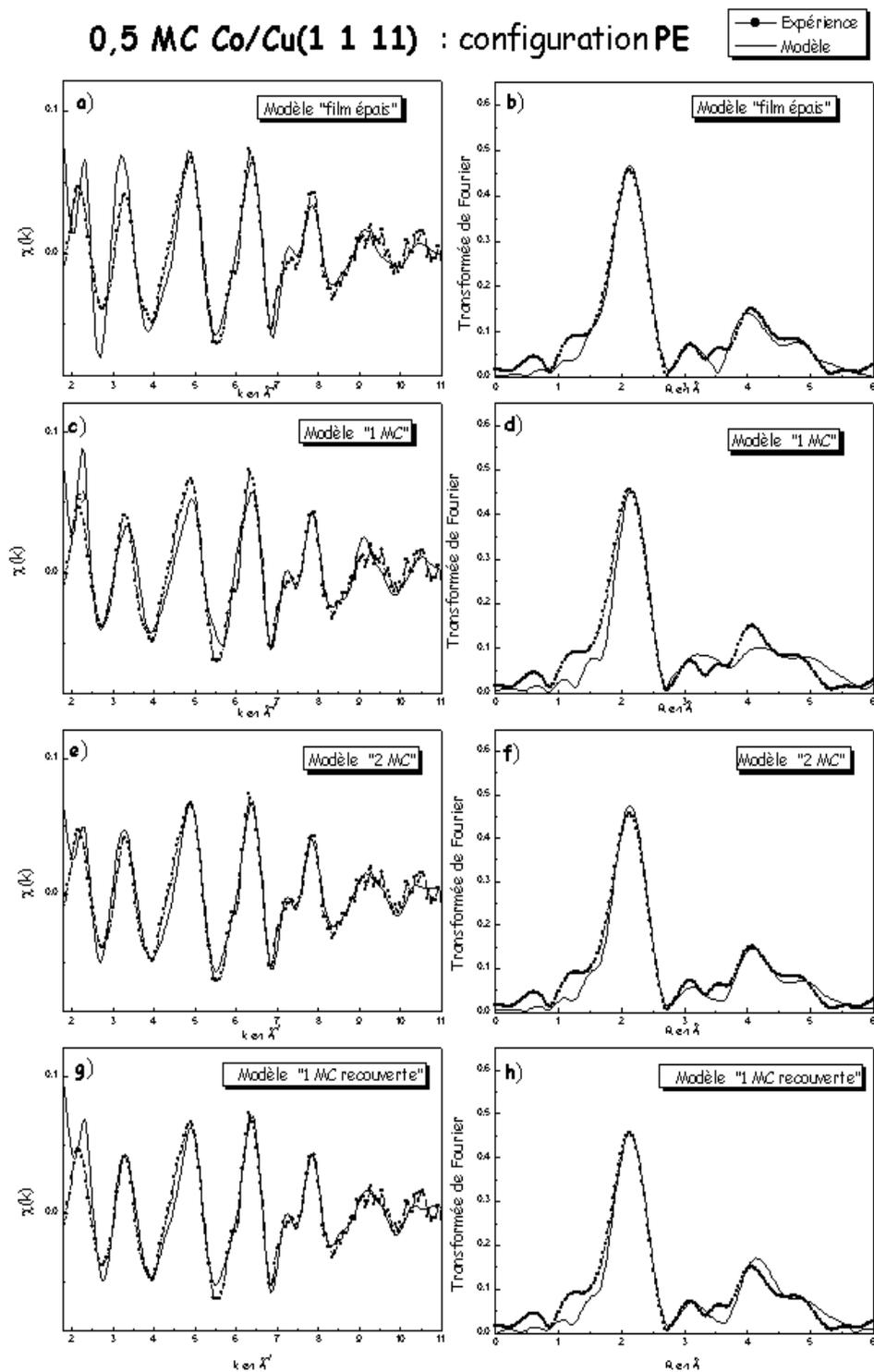


FIG. 8.22: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration PE sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 9,5 \AA^{-1} .

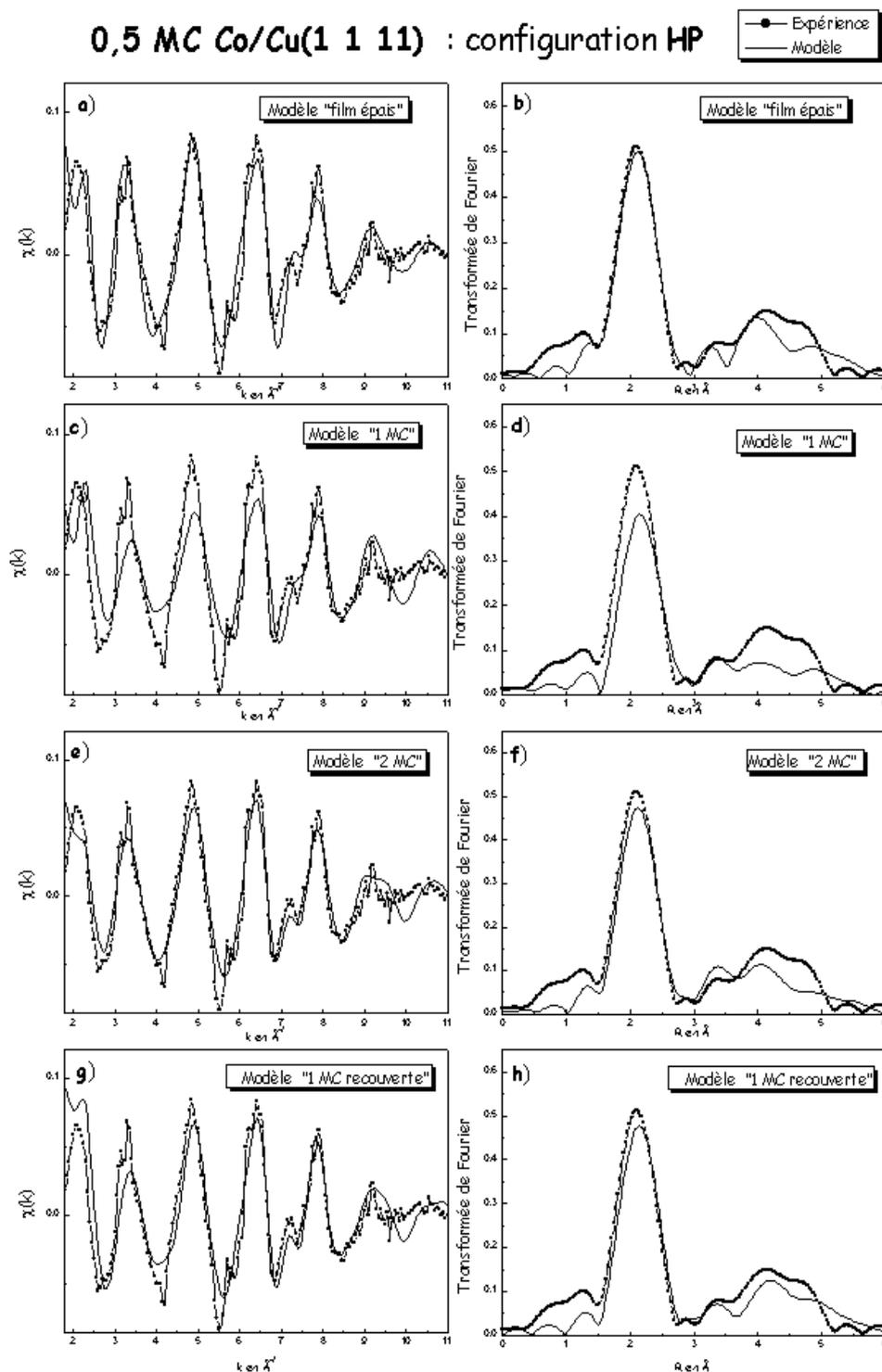


FIG. 8.23: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration HP sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 9,5 \AA^{-1} .

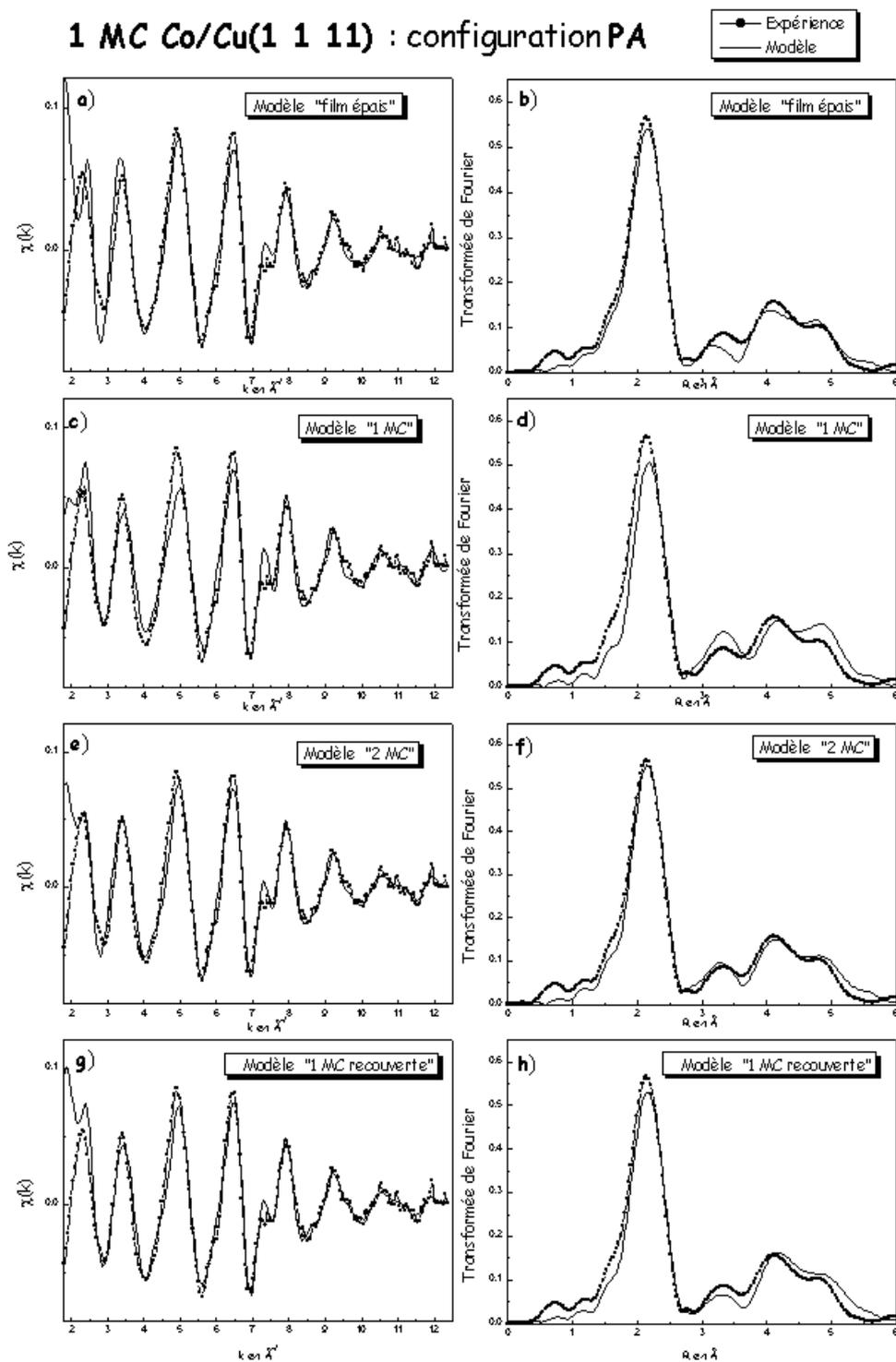


FIG. 8.24: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration **PA** sur 1 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 10,3 \AA^{-1} .

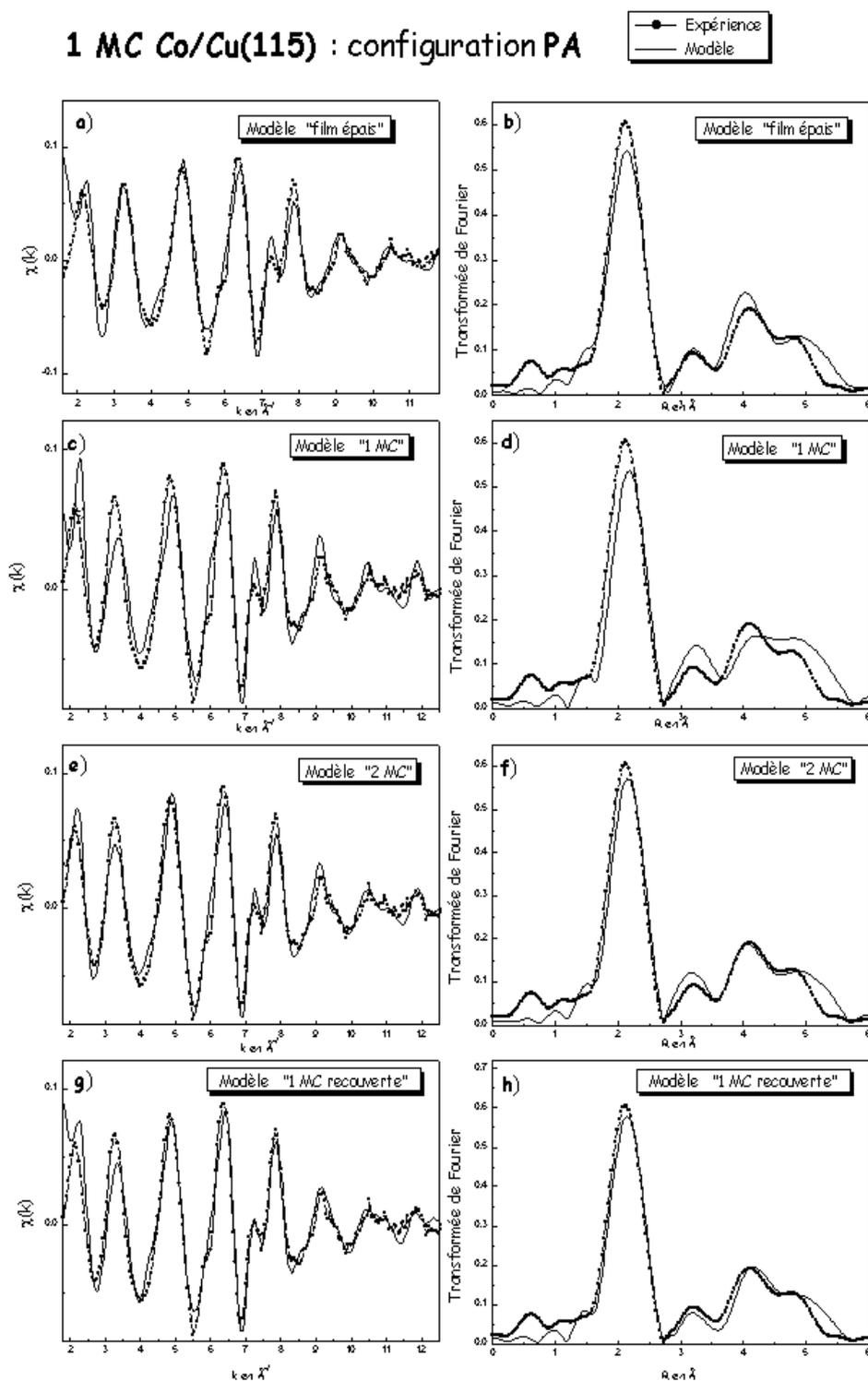


FIG. 8.25: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration *PA* sur 1 MC Co/Cu(1 1 5). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 10,3 \AA^{-1} .

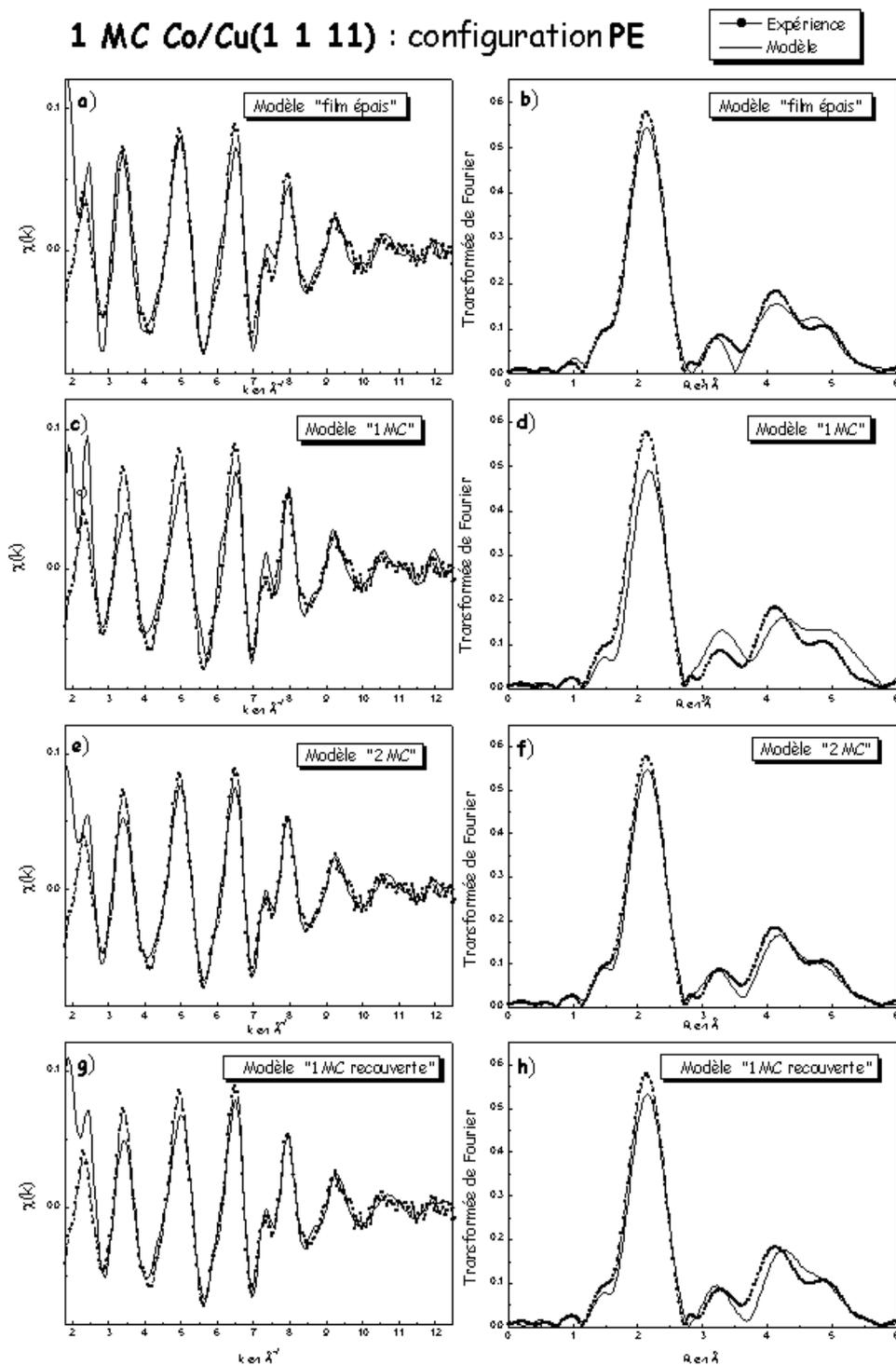


FIG. 8.26: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration **PE** sur 1 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 10,3 Å^{-1} .

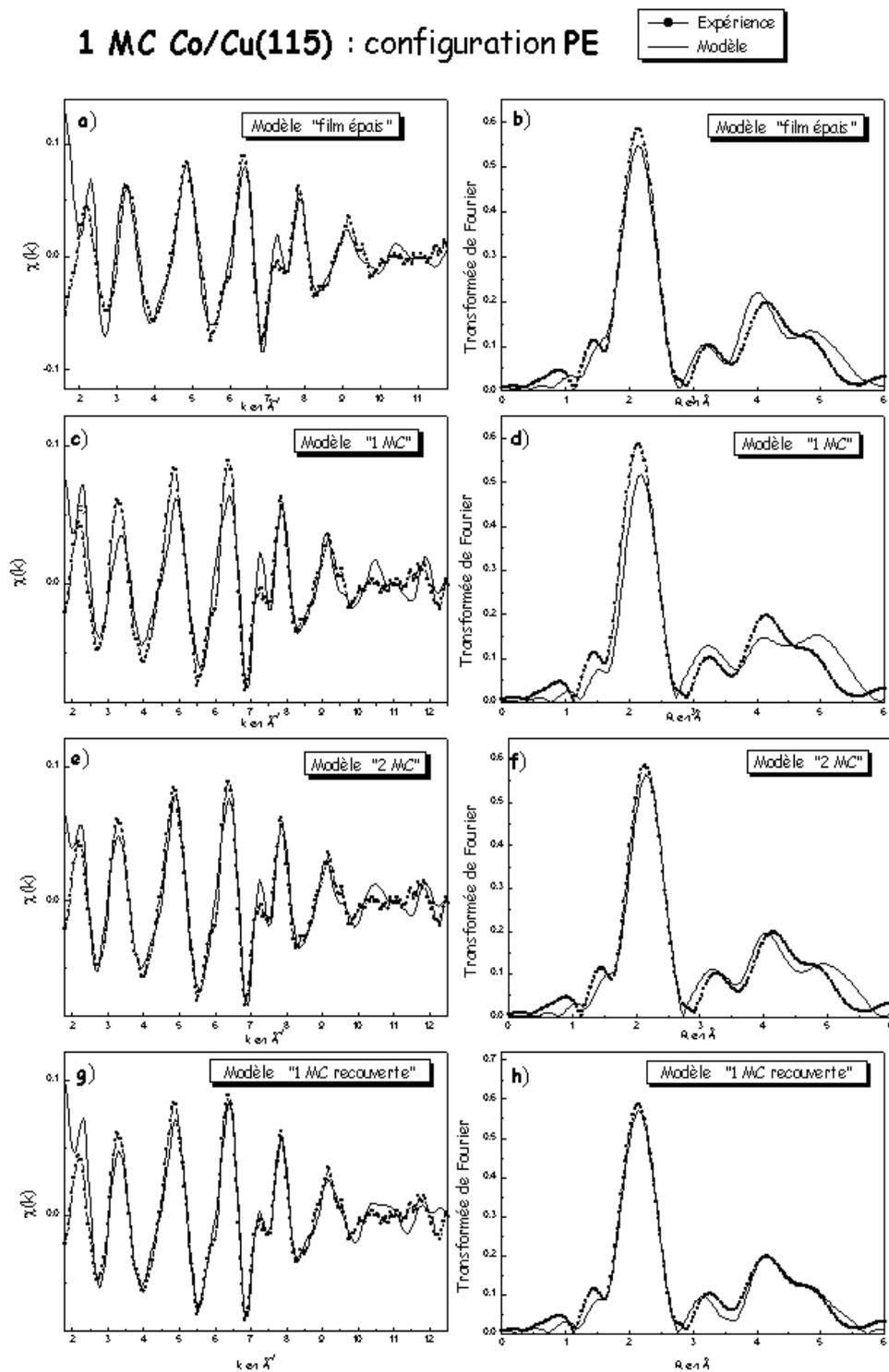


FIG. 8.27: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration **PE** sur 1 MC Co/Cu(1 1 5). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 10,3 \AA^{-1} .

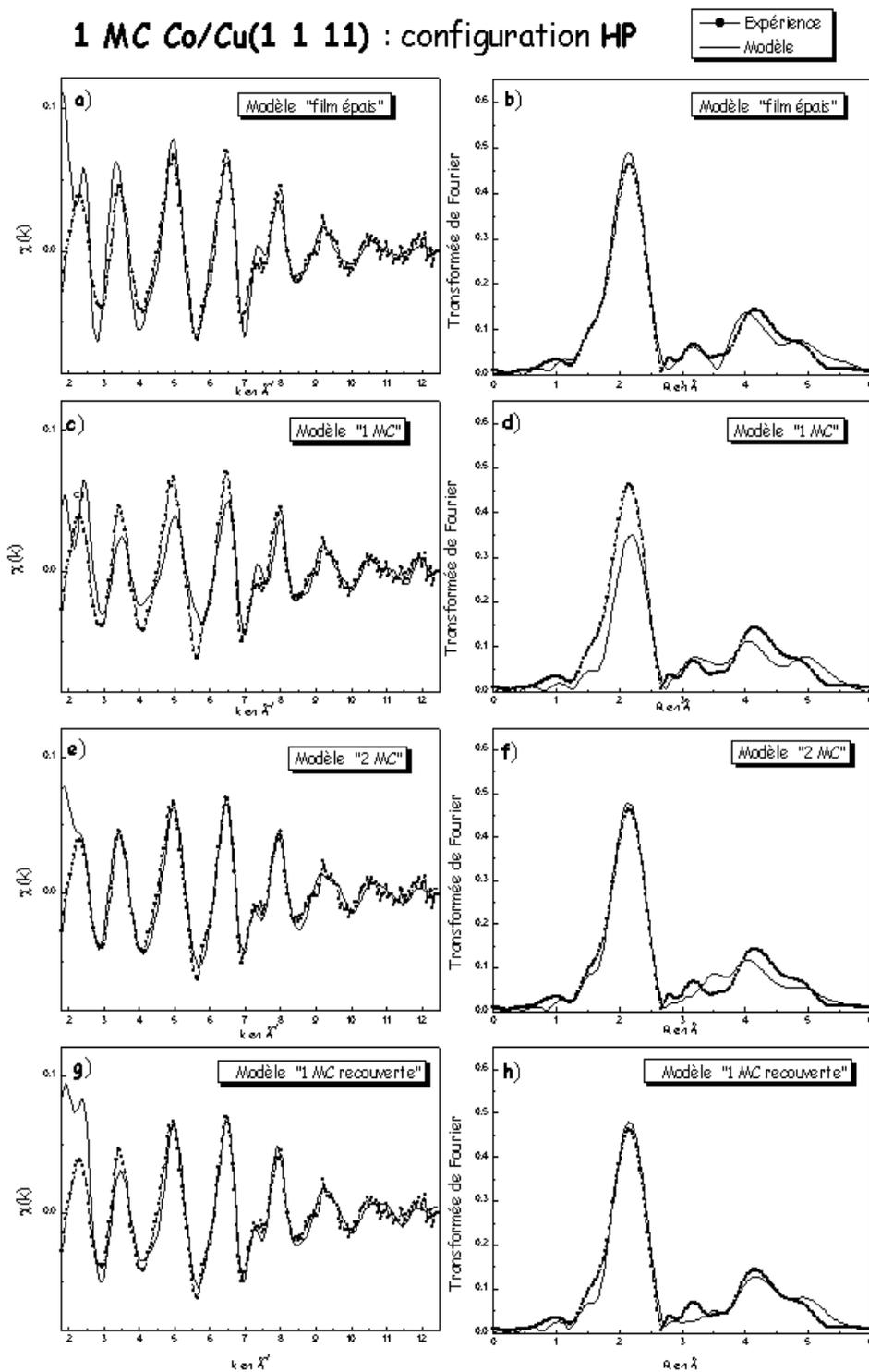


FIG. 8.28: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration **HP** sur 1 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 10,3 \AA^{-1} .

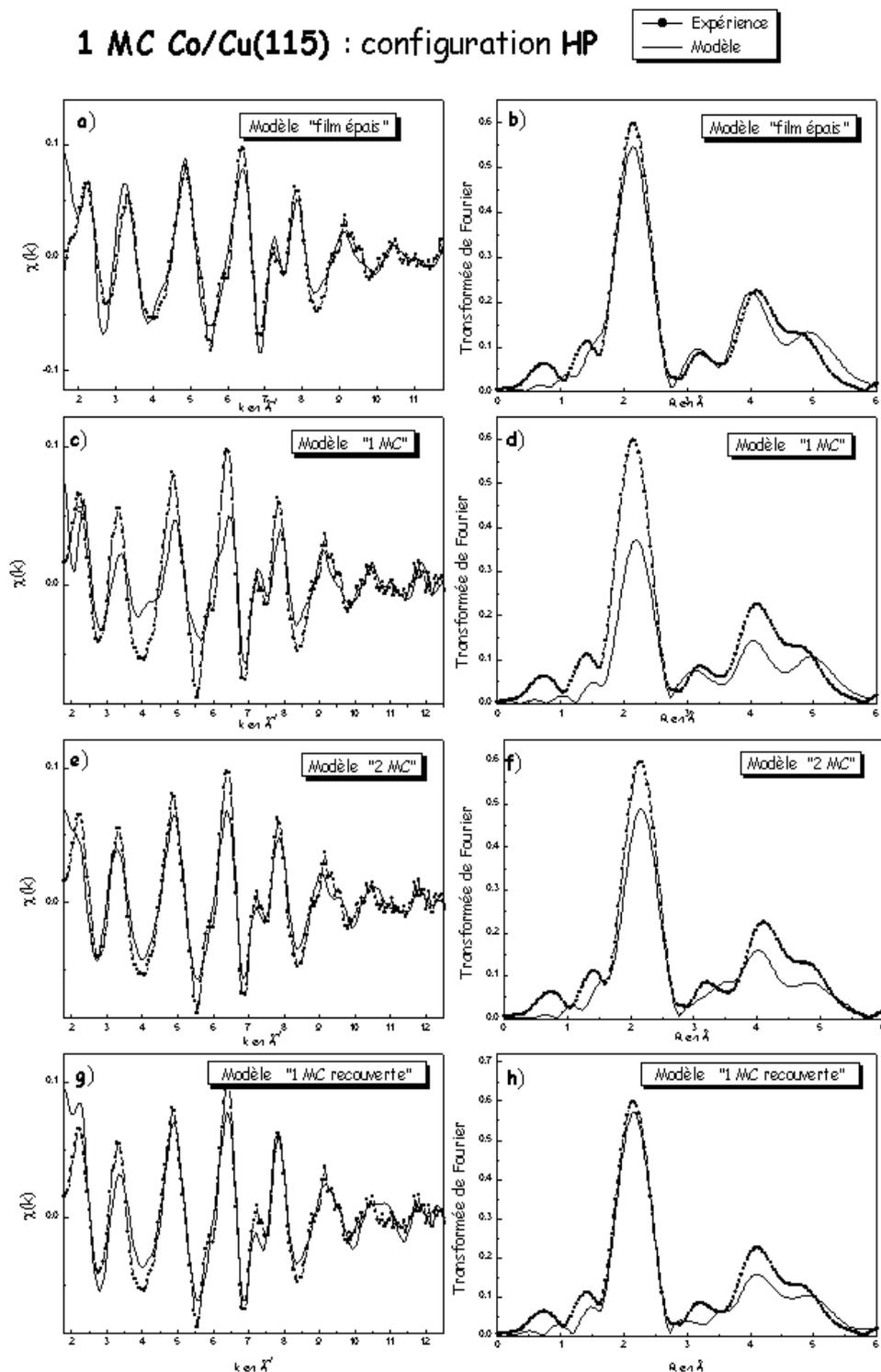


FIG. 8.29: Ajustements des modèles comparés au spectre expérimental dans la configuration **HP** sur 1 MC Co/Cu(1 1 5). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 10,3 \AA^{-1} .

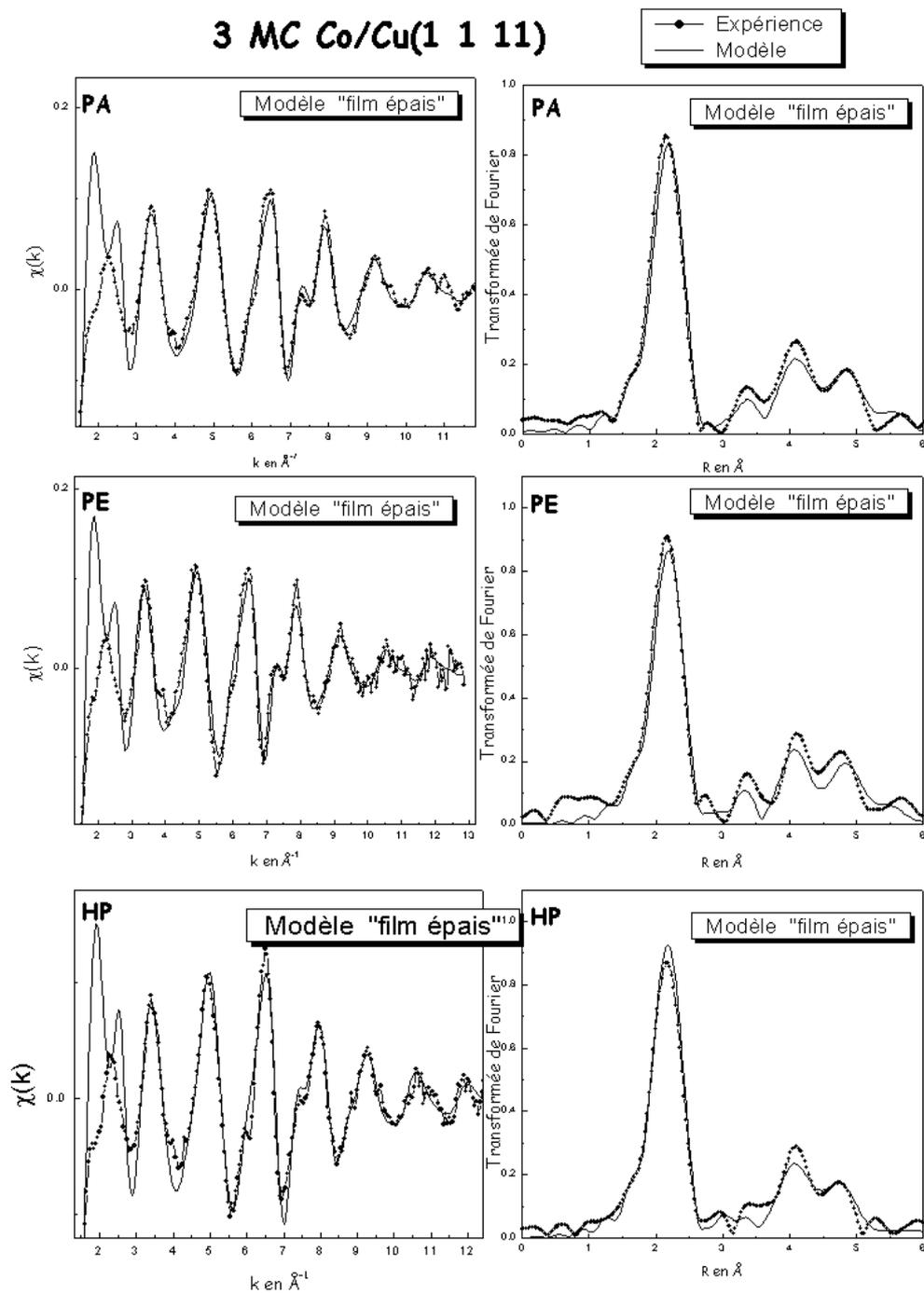


FIG. 8.30: Ajustements du modèle "film épais" comparés aux spectres expérimentaux sur 3 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 12 \AA^{-1} .

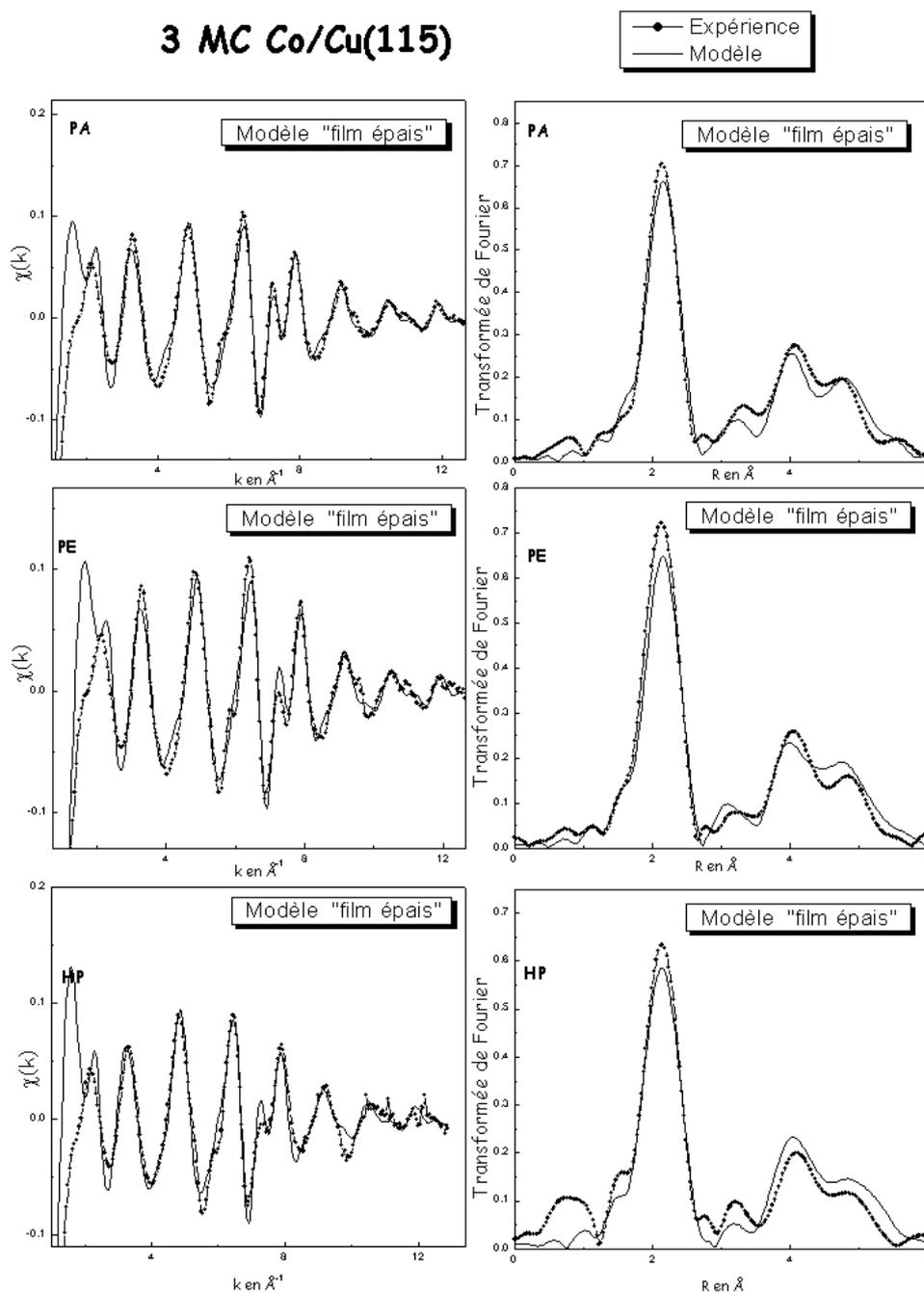


FIG. 8.31: Ajustements du modèle "film épais" comparés aux spectres expérimentaux sur 3 MC Co/Cu(1 1 5). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 12 \AA^{-1} .

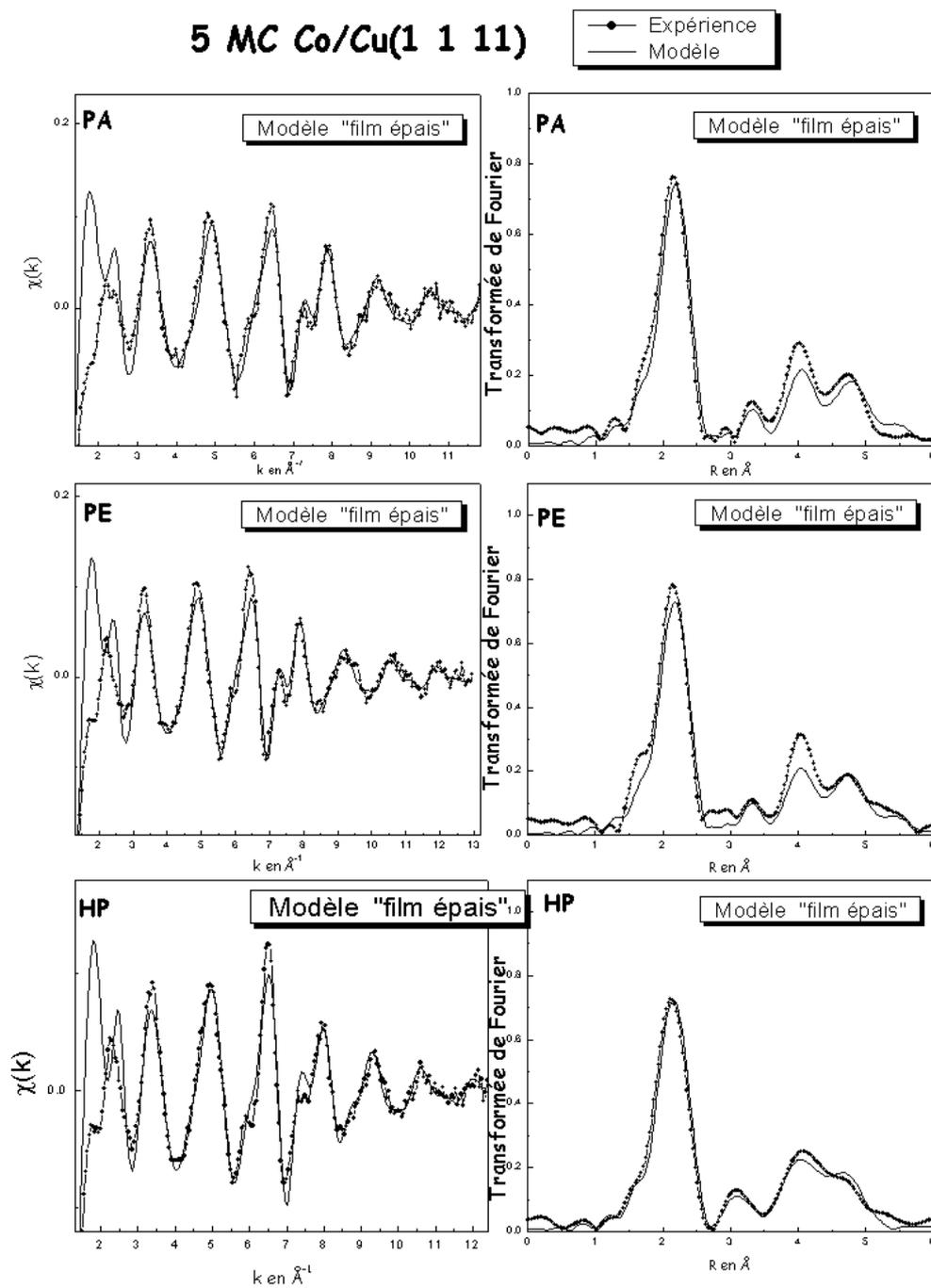


FIG. 8.32: Ajustements du modèle "film épais" comparés au spectre expérimental dans les 3 configurations de polarisation sur 5 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 12 \AA^{-1} .

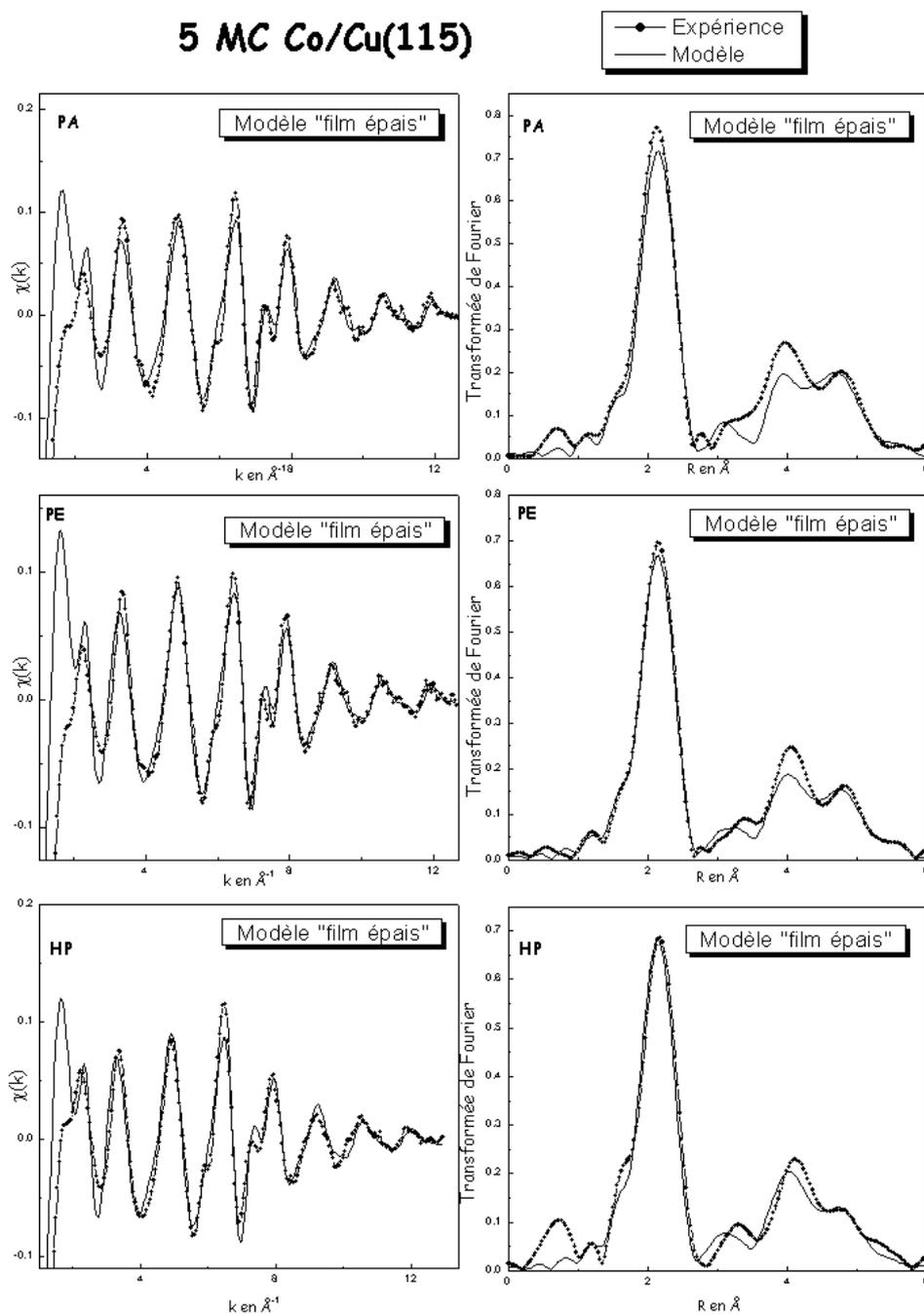


FIG. 8.33: Ajustements du modèle "film épais" comparés au spectre expérimental dans les 3 configurations de polarisation sur 5 MC Co/Cu(1 1 5). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 12 \AA^{-1} .

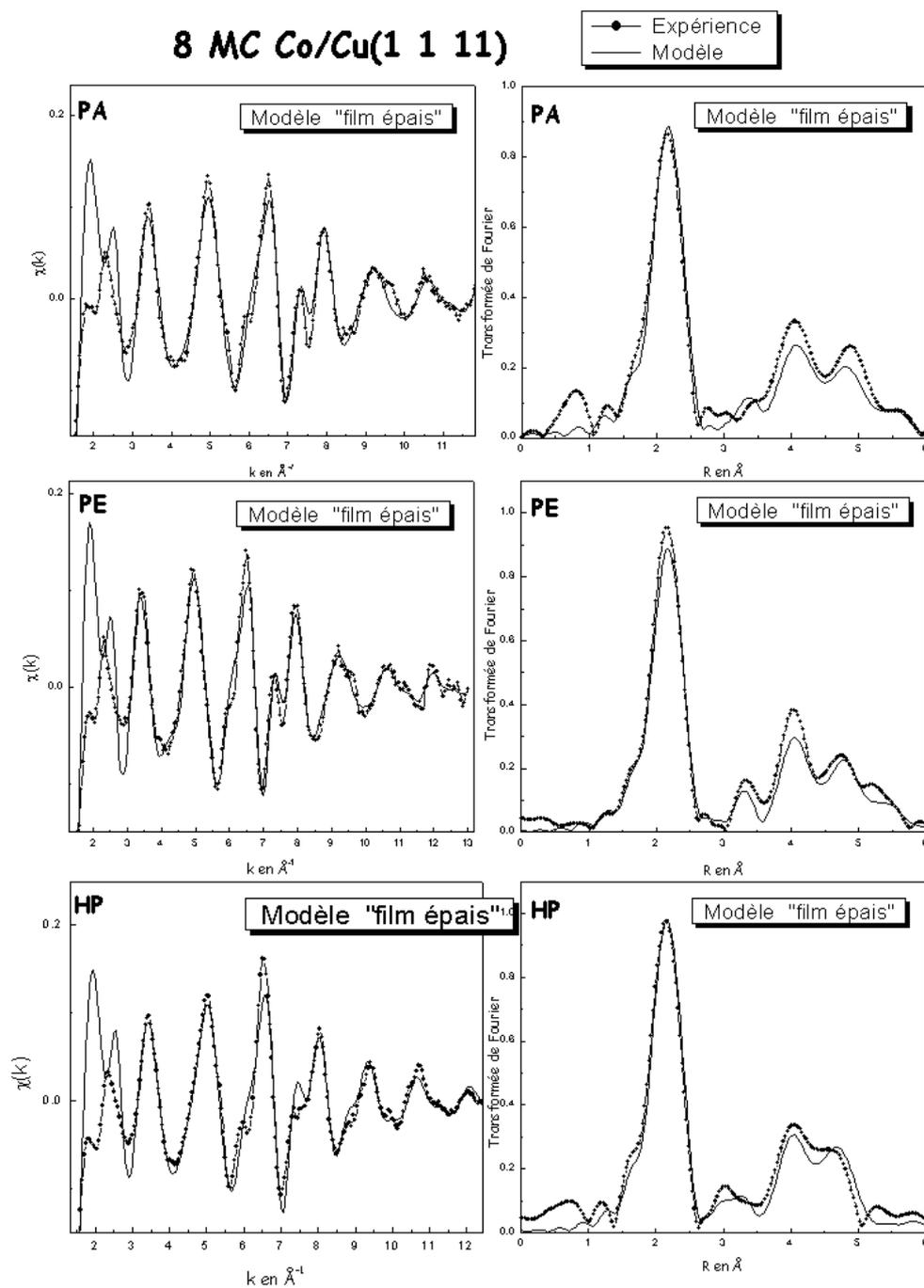


FIG. 8.34: Ajustements du modèle "film épais" comparés au spectre expérimental dans les 3 configurations de polarisation sur 8 MC Co/Cu(1 1 1). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 12 \AA^{-1} .

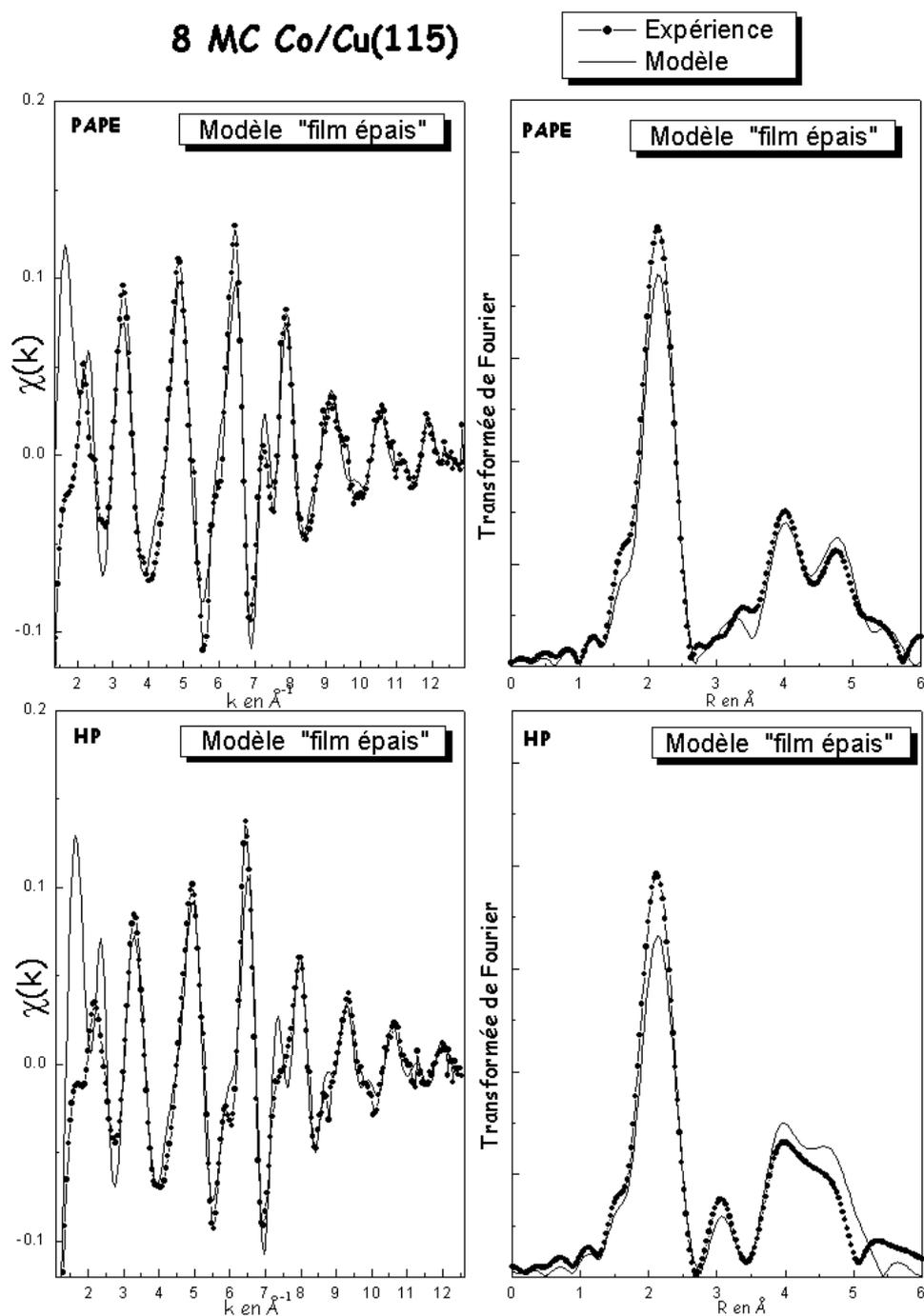


FIG. 8.35: Ajustements du modèle "film épais" comparés au spectre expérimental dans 2 configurations de polarisation sur 8 MC Co/Cu(1 1 5). La fenêtre de TF est prise entre 3 à 12 \AA^{-1} .

Bibliographie

- [1] H. Jaffrès, P. Le Fèvre, H. Magnan, A. Midoir, D. Chandesris, L. Ressler, A. Schuhl, F. Nguyen Van Dau, M. Goiran, J. P. Peyrade et A. R. Fert, Phys. Rev. B **61**, 14628 (2000).
- [2] <http://cars.uchicago.edu:80/~newville> : site internet sur lequel on peut télécharger FEFFIT ainsi que des documentations concernant ce logiciel.
- [3] O. Heckmann, H. Magnan, P. Le Fèvre, D. Chandesris et J. J. Rehr, Surf. Sci. **312**, 62 (1994).
- [4] Patrick Le Fèvre, Thèse de doctorat de l'université Paris XI, Orsay (1995).
- [5] Hélène Magnan, Thèse de doctorat de l'université Paris XI, Orsay (1991).
- [6] J. Fassbender, R. Allenspach et U. Düring, Surf. Sci. **383**, L742 (1997).
- [7] F. Nouvertné, U. May, M. Bamming, A. Rampe, U. Korte et G. Güntherodt, Phys. Rev. B **60**, 14382 (1999).
- [8] U. Ramsperger, A. Vaterlaus, P. Pfäffli, U. Maier et D. Pescia, Phys. Rev. B **53**, 8001 (1996).
- [9] A. K. Schmid et J. Kirschner, Ultramicroscopy **42-44**, 483 (1992).
- [10] J. Fassbender, U. May, B. Schirmer, R. M. Jungblut, B. Hillebrands et G. Güntherodt, Phys. Rev. B **24**, 4476 (1995).
- [11] D. Sanders, S. Ouazi, V. S. Stepanyuk, D. I. Bazhanov et J. Kirschner, Surf. Sci. **512**, 281 (2002).
- [12] H. Magnan, D. Chandesris, B. Villette, O. Heckmann et J. Lecante, Phys. Rev. Lett. **67**, 859 (1991).

Chapitre 9

Corrélation des résultats de magnétisme de structure et de morphologie

Ce chapitre grâce à l'étude de la morphologie de surface par STM et aux résultats structuraux d'EXAFS de surface, va nous permettre de conclure sur l'origine de l'anisotropie uniaxiale mesurée expérimentalement par effet Kerr. Nous allons avec le modèle magnétoélastique et le modèle de Néel simuler respectivement l'anisotropie générée par la déformation de la maille de cobalt et par la surface et l'interface. Ces deux modèles sont des modèles phénoménologiques.

9.1 Modèle magnétoélastique

Nous avons présenté dans le paragraphe 2.3.1, le modèle phénoménologique magnétoélastique. Ce modèle permet de déterminer les anisotropies magnétiques créées par les distorsions de la maille de cobalt. Nous avons montré dans la partie théorique (chapitre 2) que la contribution à l'anisotropie uniaxiale engendrée par les déformations du film s'écrit :

$$K_u^{me} = B_1 \sin^2 \alpha \left(\varepsilon_{33} - \frac{\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22}}{2} \right) - 2B_2 \left(\frac{\varepsilon_{12}}{2} \sin^2 \alpha + (\varepsilon_{13} + \varepsilon_{23}) \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \alpha \cos \alpha \right) \quad (9.1)$$

avec B_1 et B_2 les constantes magnétoélastiques déterminées par Sanders [1] $B_1 = -9,2.10^7 \text{ erg.cm}^{-3}$ et $B_2 = 7,7.10^7 \text{ erg.cm}^{-3}$ et ε_{ij} étant les composantes du tenseur des déformations. Nous rappelons que l'angle α est l'angle formé entre le plan des terrasses (001) et la surface vicinale (11n). L'expression de K_u^{me} a été déterminée en

supposant que l'aimantation était dans le plan (11n). Les composantes ε_{ij} sont définies par :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (9.2)$$

avec u_i est la coordonnée du vecteur déformation dans la direction i et x_i la coordonnée du point selon i où s'effectue la distorsion. L'indice $i = 1$ correspond à la direction [100], $i = 2$ à [010] et $i = 3$ à la direction [001] qui sont les trois directions cristallographiques de la maille de cobalt. L'EXAFS a montré qu'il n'y avait pas d'anisotropie dans le plan (001) mais qu'il y avait une tétragonalisation du film. Toutefois comme l'aimantation se trouve dans le plan (11n), la tétragonalisation qui est perpendiculaire au plan(001) induit une anisotropie de type magnétoélastique dans le plan (11n). Les mesures d'EXAFS regroupées dans le tableau 9.1 vont permettre de déterminer les composantes du tenseur des déformations. Ces mesures de structure montrent que pour toutes les épaisseurs et les deux substrats à marches, les distances R_{PA} et R_{PE} sont identiques et que R_{HP} est inférieure aux liaisons dans le plan ce qui indique que la structure est tétragonale. Ceci implique que dans le plan (001), $\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22} = \varepsilon_{plan}$ et que les composantes ε_{ij} avec $i \neq j$ sont nulles car la maille ne subit pas de déformation de cisaillement. La formule de la contribution à l'anisotropie magnétique magnétoélastique K_u^{me} s'écrit alors dans notre cas :

$$K_u^{me} = B_1 \sin^2 \alpha (\varepsilon_{33} - \varepsilon_{plan}) \quad (9.3)$$

Les valeurs de ε_{33} et de ε_{plan} sont résumées dans le tableau 9.2 en fonction du substrat et de l'épaisseur de cobalt. Finalement, on obtient les valeurs de K_u^{me} qui sont regroupées dans le tableau 9.3.

Nous avons comparé les valeurs de K_u^{me} avec les valeurs expérimentales sur le graphe 9.1. Nous concluons d'après ces tracés que la contribution à l'anisotropie magnétique liée à la déformation de la maille est négligeable. Les mesures d'EXAFS couplées aux calculs magnétoélastiques mettent clairement en évidence que ce ne sont pas des anisotropies de structure dans le plan des terrasses qui génèrent l'anisotropie uniaxiale et que la tétragonalisation de la maille de cobalt n'engendre qu'un terme petit devant les valeurs expérimentales. Toutefois, ce modèle permet d'expliquer pourquoi la pente de $K_u \times d$ observée sur Cu(115) est plus importante que sur Cu(1 1 11). Pour les deux substrats, $K_u^{me} \times d$ est quasiment parallèle à $K_u \times d$, nous en déduisons par conséquent que la contribution de volume de l'anisotropie uniaxiale est principalement due à la structure tétragonale du cobalt. Nous remarquons que les valeurs de $|K_u^{me} \times d|$ sont environ dix fois plus petites que les valeurs expérimentales $|K_u \times d|$. Il est alors évident que la composante principale de l'anisotropie uniaxiale est une

3 MC	Distance 1 ^{ers} voisins $R \pm 0,01\text{\AA} \quad \sigma^2 \left(\cdot 10^{-3} \text{\AA}^2 \right)$	Modèle FEFFIT
Cu(1 1 11)	$R_{PA} = 2,56 \quad \sigma^2 = 4,9$ $R_{PE} = 2,56 \quad \sigma^2 = 4,1$ $R_{HP} = 2,52 \quad \sigma^2 = 3,3$	"film épais"
Cu(115)	$R_{PA} = 2,54 \quad \sigma^2 = 3,5$ $R_{PE} = 2,53 \quad \sigma^2 = 3,4$ $R_{HP} = 2,53 \quad \sigma^2 = 5,6$	"film épais"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,55 \quad \sigma^2 = 1,2$ $R_{HP} = 2,50 \quad \sigma^2 = 3,3$	Ref. [6]
5 MC		
Cu(1 1 11)	$R_{PA} = 2,56 \quad \sigma^2 = 3,0$ $R_{PE} = 2,55 \quad \sigma^2 = 3,5$ $R_{HP} = 2,52 \quad \sigma^2 = 3,9$	"film épais"
Cu(115)	$R_{PA} = 2,53 \quad \sigma^2 = 4,7$ $R_{PE} = 2,53 \quad \sigma^2 = 2,9$ $R_{HP} = 2,52 \quad \sigma^2 = 4,4$	"film épais"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,55 \quad \sigma^2 = 1,2$ $R_{HP} = 2,50 \quad \sigma^2 = 3,3$	Ref. [6]
8 MC		
Cu(1 1 11)	$R_{PA} = 2,55 \quad \sigma^2 = 4,5$ $R_{PE} = 2,55 \quad \sigma^2 = 4,1$ $R_{HP} = 2,51 \quad \sigma^2 = 2,9$	"film épais"
Cu(115)	$R_{PAPE} = 2,54 \quad \sigma^2 = 1,7$ $R_{HP} = 2,51 \quad \sigma^2 = 4,5$	"film épais"
Cu(001)	$R_{Plan} = 2,55 \quad \sigma^2 = 1,8$ $R_{HP} = 2,50 \quad \sigma^2 = 2,8$	Ref. [6]

TAB. 9.1: Résultats d'EXAFS concernant les dépôts de 3 à 8 MC de cobalt sur Cu(111), Cu(115) et Cu(001).

Echantillon	ε_{33} Cu(1 1 11)	ε_{plan} Cu(1 1 11)	ε_{33} Cu(115)	ε_{plan} Cu(115)
3 MC	-0,01035	0,02184	0,00787	0,01186
5 MC	-0,00624	0,01785	0,0187	0,00987
8 MC	-0,01434	0,01785	-0,01024	0,01386

TAB. 9.2: Tableau regroupant les valeurs des composantes du tenseur des déformations mesurées à partir des résultats d'EXAFS de surface.

Echantillon	K_u^{me} (Cu(1 1 11)) erg.cm ⁻³	K_u^{me} (Cu(115)) erg.cm ⁻³
3 MC	4,77.10 ⁴	2,68.10 ⁴
5 MC	3,57.10 ⁴	5,36.10 ⁴
8 MC	4,78.10 ⁴	16,16.10 ⁴

TAB. 9.3: Tableau regroupant les valeurs de K_u^{me} pour Co/Cu(1 1 11) et Co/Cu(115) en fonction de l'épaisseur de cobalt.

MC de Co sur Cu(1 1 11)	K_u Millev 10 ⁶ erg.cm ⁻³	K_4 Millev 10 ⁵ erg.cm ⁻³
3,5	1, 817 ± 0, 2	-3, 585 ± 2
4	2, 079 ± 0, 2	-6, 290 ± 2
4,5	1, 761 ± 0, 2	-3, 447 ± 2
5	1, 715 ± 0, 3	-4, 389 ± 3
6	1, 517 ± 0, 3	-4, 474 ± 3
8	1, 214 ± 0, 07	-5, 413 ± 0, 7
10	0, 833 ± 0, 05	-4, 268 ± 0, 5
12	0, 764 ± 0, 05	-4, 978 ± 0, 5

TAB. 9.4: Constantes d'anisotropie magnétique sur Co/Cu(1 1 11) en fonction de l'épaisseur de cobalt.

MC de Co sur Cu(115)	K_u Millev 10 ⁶ erg.cm ⁻³	K_4 Millev 10 ⁵ erg.cm ⁻³
6,5	1, 855 ± 0, 12	-5, 374 ± 1, 2
8,5	1, 552 ± 0, 2	-5, 188 ± 2, 0
10,5	1, 465 ± 0, 19	-6, 062 ± 1, 9

TAB. 9.5: Constantes d'anisotropie magnétique sur Co/Cu(115) en fonction de l'épaisseur de cobalt.

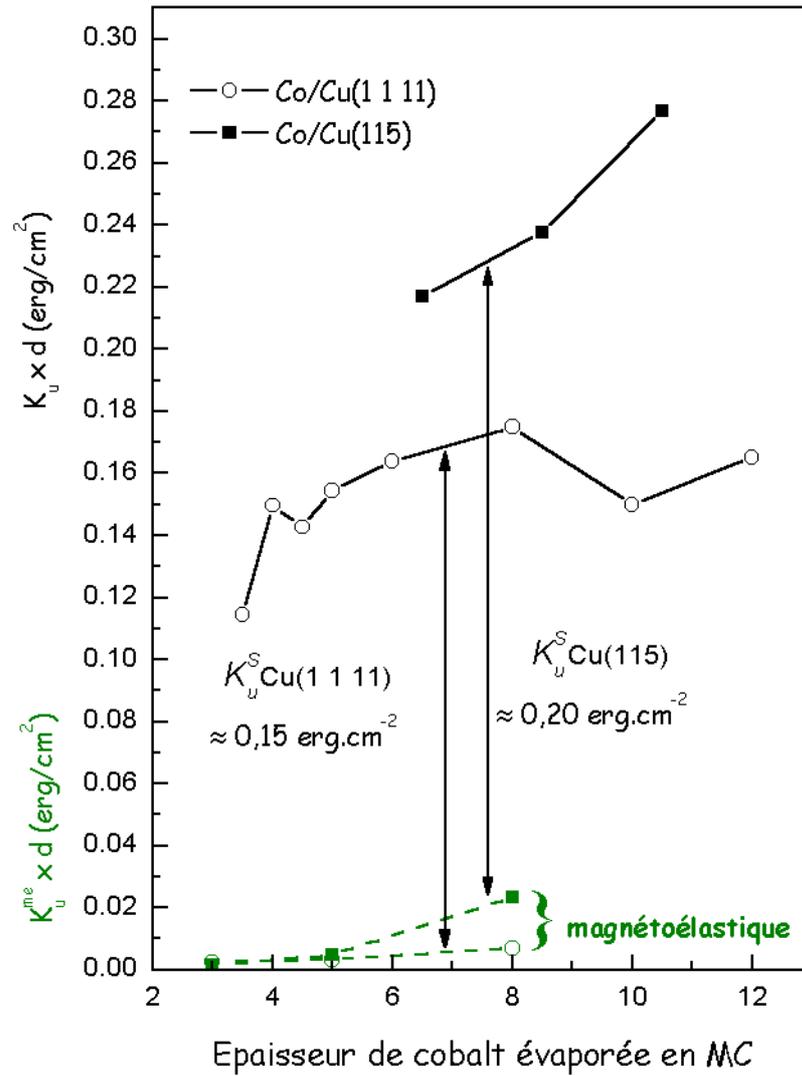


FIG. 9.1: Comparaison des valeurs de $K_u \times d$ expérimentales (en trait plein) en fonction de l'épaisseur d du dépôt avec celles obtenues grâce au modèle magnétoélastique et aux mesures d'EXAFS (trait pointillé).

contribution de surface K_u^S ($K_u^S = K_u - K_u^{me}$) qui est de l'ordre de $0,2 \text{ erg.cm}^{-2}$ sur Co/Cu(115) et de $0,15 \text{ erg.cm}^{-2}$ sur Co/Cu(1 1 11) (figure 9.1).

9.2 Modèle de Néel

9.2.1 Simulation de la contribution de la surface

Le modèle de Néel va nous permettre de simuler la contribution de surface de l'anisotropie uniaxiale notée K_u^{mcS} des atomes situés en surface et en bords de marches. Ce modèle a été précédemment exposé dans le paragraphe 2.3.2. La microscopie à effet tunnel nous a permis d'étudier précisément la surface des dépôts de cobalt et de montrer que l'évaporation de cobalt perturbait les deux substrats Cu(1 1 11) et Cu(115). La morphologie observée est constituée d'îlots ou de marches très ondulées. Nous sommes donc loin d'une surface de cobalt reproduisant exactement celle du substrat. Nous allons tenir compte de ces caractéristiques dans le modèle de Néel, en utilisant les calculs présentés dans le paragraphe 2.3.2. En effet, nous allons reproduire l'ondulation des marches en insérant une densité de cran atomique plus ou moins importante le long des bords de marches. La formation de crans négatifs (diminution de la largeur de terrasse inférieure) ou de crans positifs modifie de façon identique K_u^{mcS} . Nous avons montré au chapitre 2 qu'en introduisant un cran atomique tous les N atomes, K_u^{mcS} s'écrit respectivement pour Cu(1 1 11) et Cu(115) de la façon suivante :

$$K_u^{mcS} (1\ 1\ 11)_{\text{cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,0745l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,178}{6 \times N} \right) \quad (9.4)$$

$$K_u^{mcS} (115)_{\text{cran tous les } N \text{ atomes}} = -0,1234l_{Co}^s + \frac{l_{Co}^s}{2} \left(\frac{1,203}{3 \times N} \right) \quad (9.5)$$

avec $l_{Co}^s = -1,12 \text{ erg.cm}^{-2}$ calculé par H. Bulou à partir des valeurs de B_1 et B_2 déterminées par Sander [1] (chapitre 2).

Les analyses statistiques réalisées sur les images STM nous ont permis de déterminer le nombre de cran présents le long des bords de marches. Pour 3 MC Co/Cu(1 1 11), nous avons estimé la taille moyenne des îlots constituant la surface à 50 \AA de large selon $[110]$ et à 100 \AA selon $[\bar{1}\bar{1}0]$. Nous modélisons les îlots en supposant que les marches oscillent sur une période de 200 \AA avec une amplitude de 50 \AA ce qui correspond en moyenne à un cran tous les deux atomes (figure 9.2).

L'exploitation des fonctions de corrélation de bords de marches (graphe 7.24) montrent qu'en moyenne les marches oscillent pour 5 MC Co/Cu(1 1 11) tous les 110 \AA et que l'amplitude de ces oscillations est de 12 \AA . Pour 8 MC, la période d'oscillation

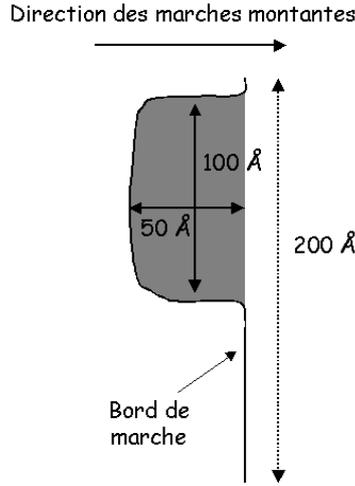


FIG. 9.2: Schématisation des îlots observés sur un dépôt de 3 MC Co/Cu(1 1 1).

est de 450 Å et l'amplitude de 17 Å. Finalement, nous concluons qu'un bord de marche sur 5 MC Co/Cu(1 1 1) présente un cran tous les 12 Å et que sur 8 MC Co/Cu(1 1 1), nous avons un cran tous les 34 Å. Pour les dépôts réalisés sur Cu(115), comme il n'est pas possible de numériser les bords de marches et donc de calculer les fonctions de corrélation associées, nous avons estimé pour 5 MC de manière plus grossière, un cran tous les 20 Å et pour 8 MC un cran tous les 30 Å. Finalement en introduisant ces informations dans les formules 9.4 et 9.5, nous obtenons les valeurs de K_u^{mcS} résumées dans le tableau 9.6. Si le film de cobalt présentait des bords de marches identiques à ceux du substrat, les valeurs de K_u^{mcS} pour Cu(1 1 1) serait 0,0834 erg.cm⁻² et pour Cu(115) 0,138 erg.cm⁻². D'après le tableau 9.6, nous observons que l'ondulation des bords de marche diminue la valeur de K_u^{mcS} et par conséquent réduit l'anisotropie uniaxiale. Les calculs effectués grâce au modèle de Néel montrent que les dépôts réalisés sur Cu(115) présentent une constante d'anisotropie uniaxiale plus élevée que sur Cu(1 1 1) ce qui a été observé expérimentalement (tableaux 9.5 et 9.4).

La contribution à l'anisotropie uniaxiale que nous avons calculée, grâce au modèle de Néel, est une contribution de surface, en effet seuls les atomes de surface sont pris en considération dans les calculs. Nous rappelons que K_u^S , la contribution de surface de la constante d'anisotropie uniaxiale expérimentale est égale à $K_u^S(Cu(111)) \approx 0,15$ erg.cm⁻² et $K_u^S(Cu(115)) \approx 0,2$ erg.cm⁻² (graphe 9.1). Les valeurs calculées grâce au modèle de Néel représentent environ 50 % de la valeur de K_u^S aussi bien pour Co/Cu(1 1 1) que pour Cu(115) (tableau 9.6).

Nous avons tracé sur la figure 9.3, la somme de la contribution magnétoélastique avec la contribution de surface calculée avec le modèle de Néel pour les différentes

Echantillon	K_u^{mcS}	K_u^{mcS}
	Cu(1 1 1) avec crans erg.cm ⁻²	Cu(115) avec crans erg.cm ⁻²
3 MC	0,0284	
5 MC	0,0594	0,11
8 MC	0,0749	0,12
Marches droites	0,0834	0,138

TAB. 9.6: Tableau regroupant les valeurs de K_u^{mcS} en fonction de l'épaisseur de cobalt et pour Cu(1 1 1) et Cu(115) avec des marches droites et en tenant compte des ondulations des bords de marche.

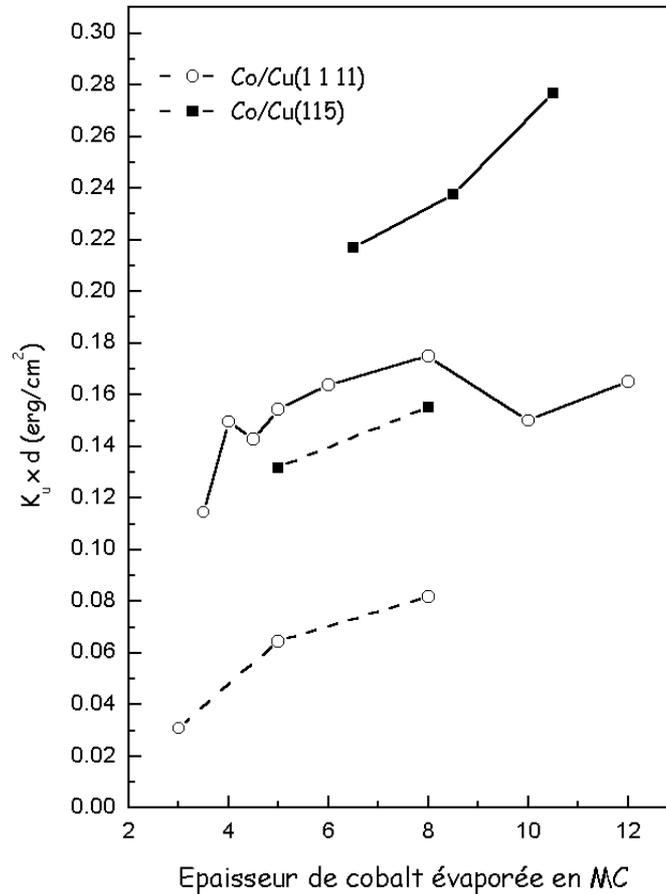


FIG. 9.3: Comparaison de $K_u \times d$ expérimental (trait plein) avec la somme des contributions de la surface calculée par le modèle de Néel et la contribution magnétoélastique (trait pointillé).

Echantillon	B_1 erg.cm ⁻³	B_2 erg.cm ⁻³	l_{Co} erg.cm ⁻³
Sander et Bulou [1]	-9, 2.10 ⁷	7, 7.10 ⁷	-6, 52.10 ⁷
Chuang [5]	-1, 6.10 ⁸	3, 8.10 ⁸	-1, 5.10 ⁸

TAB. 9.7: Tableau regroupant les valeurs de B_1 et B_2 ainsi que l_{Co} calculées par Sander et Bulou et par Chuang et al..

épaisseurs. Nous remarquons que les modèles ne reproduisent que 55 % des valeurs expérimentales. Toutefois, la variation des valeurs simulées est assez fidèle à celles des valeurs expérimentales. La diminution de $K_u(Cu(1111))$ observée à 3 MC est simulée correctement en introduisant dans le modèle une morphologie en îlots. Pour les épaisseurs plus importantes, K_u se stabilise, les marches devenant de plus en plus droites pour les dépôts effectués sur Cu(1 1 11).

Le désaccord entre l'expérience et les modèles utilisés peut avoir plusieurs origines. Les modèles utilisés (modèle de Néel et magnétoélastique) sont des modèles phénoménologiques. Ils sont tous les deux basés sur les valeurs des constantes magnétoélastiques B_1 et B_2 . Le modèle magnétoélastique utilise directement ces deux constantes. Pour le modèle de Néel, le coefficient l_{Co}^s est calculé à partir de ces constantes. Nous avons utilisé les valeurs de B_1 et B_2 fournies par Sander dans [1] et le coefficient l_{Co}^s déterminé par H. Bulou à partir de [1]. D'autres valeurs de B_1 et B_2 pour le cobalt cubique à faces centrées sont rencontrées dans la littérature. Chuang et al. [5] fournissent des valeurs de B_1 et B_2 plus élevées (tableau 9.7). Il est à noter que Sander et Chuang ont utilisés les mêmes résultats expérimentaux fournis par Fujiwara et al. [4] pour extraire B_1 et B_2 dans la structure cubique à faces centrées du cobalt. Cette structure n'existe pas à température ambiante, la détermination s'effectue donc par extrapolation sur des alliages de Co/Pd riches en cobalt. Nous remarquons d'après le tableau 9.7 que Sander et Chuang ne convergent pas vers les mêmes résultats. Pour nos calculs, nous avons privilégié les valeurs plus récentes obtenues par Sander. Quant à l_{Co} , nous utiliserons pour rester cohérents, celui calculé par H. Bulou avec les valeurs de B_1 et B_2 de Sander.

Un autre phénomène pouvant expliquer la différence modèle-expérience est le fait que le modèle de Néel ne tient compte que de l'interaction avec les premiers voisins ce qui peut être discuté étant donné que les électrons 3d des métaux de transition sont délocalisés. Deux autres origines peuvent également expliquer cette différence : l'influence de l'interface et l'interaction dipolaire. Ces deux points seront développés dans les paragraphes suivants.

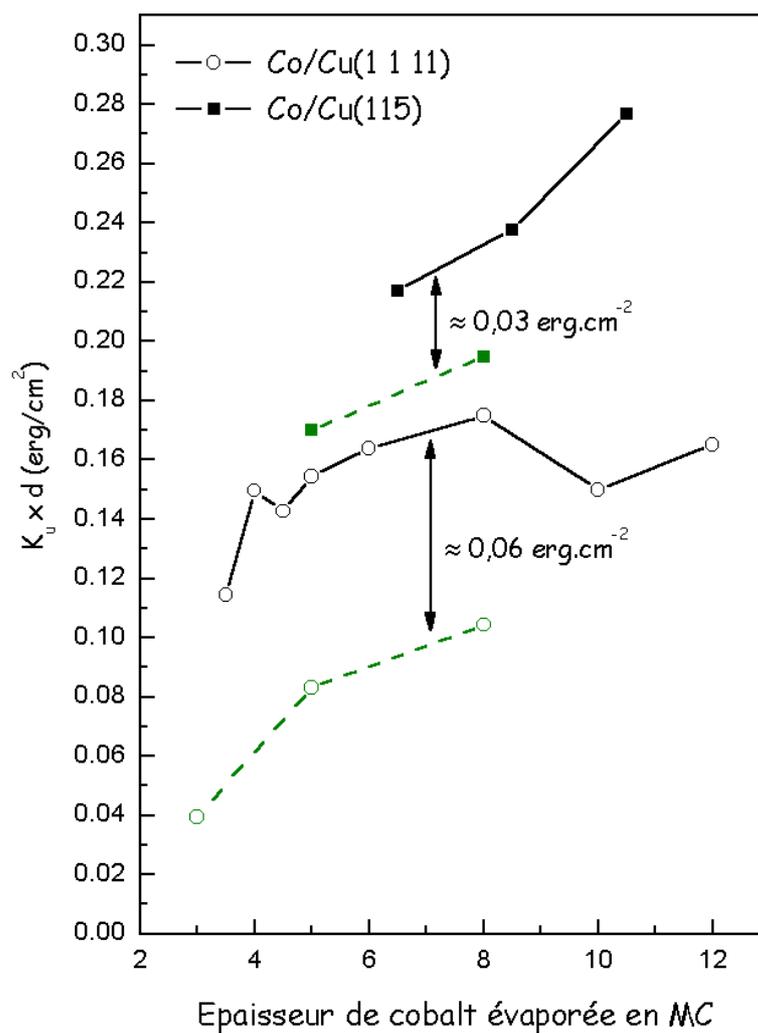


FIG. 9.4: Comparaison entre l'expérience (en trait plein) et en trait pointillé, la somme des simulations effectuées avec le modèle de Néel (surface+interface) et la contribution magnétoélastique.

9.2.2 Simulation de la contribution d'interface

Dans le paragraphe précédent, nous avons supposé que l'interface cobalt cuivre ne contribuait pas à l'anisotropie uniaxiale. Si tel était le cas, le fait de recouvrir nos films de cobalt par du cuivre, ferait disparaître l'anisotropie uniaxiale. Or d'après nos mesures expérimentales sur 10 MC Cu/5 MC Co sur Cu(1 1 11) et sur Cu(115), nous avons observé que l'axe perpendiculaire aux bords de marche était un axe difficile et celui parallèle aux bords de marches restait une direction de facile aimantation. Nous avons mesuré, dans le cas de ces films recouverts, que l'anisotropie uniaxiale était inférieure à celle des films non recouverts mais ne s'annulait pas. Ainsi nous pouvons donc conclure que l'interface cobalt-cuivre tout comme l'interface cobalt-vide contribue à l'anisotropie uniaxiale et qu'il est alors faux de négliger son influence.

Si maintenant, nous prenons en compte le rôle joué par l'interface, nous avons alors besoin de la valeur du coefficient l_{Cu}^s , or ce terme n'est pas connu.

De même si l'interface cobalt-cuivre contribuait de manière identique à la surface cobalt-vide, la valeur de l'anisotropie resterait la même pour les films recouverts et les films non recouverts de cuivre, or ce n'est pas le cas expérimentalement. Nous allons donc déterminer l'ordre de grandeur de K_u^{mcl} , l'anisotropie de l'interface Co-Cu.

Puisque que l'anisotropie de volume de type magnétoélastique est très faible (graphe 9.1), nous avons :

$$K_u \approx \frac{K_u^{mcS} + K_u^{mcl}}{d} \quad (9.6)$$

avec $K_u^{mcS} = K_u^{mcS}(Co - vide)$ et $K_u^{mcl} = K_u^{mcl}(Co - Cu)$.

Comme la structure des films de cobalt recouverts est identique à celle des films non recouverts, nous pouvons aussi négliger la contribution magnétoélastique est écrire que $K_u^{recouvert} = \frac{2K_u^{mcl}}{d}$ en supposant que les deux interfaces cobalt-cuivre soient identiques. Ainsi, nous obtenons :

$$\frac{K_u^{mcS}}{K_u^{mcl}} = \left(\frac{2K_u(d)}{K_u^{recouvert}(d)} - 1 \right) \quad (9.7)$$

Nous avons calculé ce rapport pour les films de 5 MC Co/Cu(1 1 11) recouverts et non recouverts, sur Cu(115) et sur les films réalisés par Kawakami et al. (paragraphe 6.4). Nous trouvons pour ces trois substrats que $0,1K_u^{mcS} < K_u^{mcl} < 0,5K_u^{mcS}$. Ceci signifie que la contribution de l'interface cobalt-cuivre est de deux à dix fois plus petite que celle de l'interface cobalt-vide. Nous avons par conséquent K_u^{mcSI} , la somme de l'anisotropie de surface et d'interface, qui est encadrée par : $1,1K_u^{mcS} < K_u^{mcSI} < 1,5K_u^{mcS}$. Nous avons tracé sur le graphe 9.4, la somme de la composante magnétoélastique avec celle du modèle de Néel considérant le rôle joué par la surface

et l'interface en prenant $K_u^{mcSI} = 1,3K_u^{mcS}$. Les modèles fournissent des valeurs de $K_u \times d$ inférieures aux données expérimentales. Cette différence entre les modèles et l'expérience est probablement liée au fait que nous ayons négligé le terme d'interaction dipolaire.

9.3 Interaction dipolaire

Enfin pour finir, le terme d'anisotropie lié à l'interaction dipolaire a été négligé dans nos simulations. Or la forme allongée des îlots et des marches doit probablement contribuer à l'anisotropie uniaxiale. Pour un film plat, l'interaction dipolaire génère un terme d'anisotropie de forme d'une valeur de $2\pi M_s^2$ qui favorise une aimantation dans le plan du film. Pour les surfaces à marches, des calculs d'interaction dipolaire [2][3] montrent que cette interaction favorise toujours l'aimantation parallèle aux bords de marches et que ce terme est loin d'être négligeable. Arias et al. [3] ont calculé ce terme dipolaire dans le cas de dépôt de fer sur une surface à marches et ils montrent que K_u^{dip} égal à $E_{dipolaire}^\perp \text{ marches} - E_{dipolaire}^{\parallel \text{ marches}}$ est proportionnel à α l'angle de coupe pour les petits angles. Ils soulignent également que ce terme est une contribution de surface qui ne dépend pas de l'épaisseur du film considéré. Dans leur cas, avec une valeur de α comprise en 7° et 15° en extrapolant leurs résultats et en les corrigeant avec le facteur multiplicatif $\left(\frac{M_s(\text{Co})}{M_s(\text{Fe})}\right)^2 \left(i.e : \left(\frac{1422}{1745}\right)^2\right)$ nous obtenons : $0,04 < K_u^{dip} < 0,07 \text{ erg.cm}^{-2}$ pour des marches parfaites. Ces valeurs sont non négligeables par rapport à l'ordre de grandeur de nos mesures et représentent la différence existant entre l'expérience et la simulation (Néel+magnétoélastique) (figure 9.4). Toutefois ce calcul considère des marches droites, or les images STM montrent une oscillation des bords de marches. Nous pouvons donc penser que cette ondulation tend à diminuer l'anisotropie. Malheureusement, par manque de temps, nous n'avons pas pu calculer exactement le terme d'interaction dipolaire.

9.4 Conclusion

Ce dernier chapitre corrélant les mesures de structure de morphologie et de magnétisme et simulant l'anisotropie montre clairement que l'origine l'anisotropie uniaxiale est principalement liée à la morphologie du dépôt. Nous avons montré que la tétragonalisation de la maille de cobalt engendrait une anisotropie volumique négligeable face à la contribution de la surface et de l'interface. Nous avons mis en évidence grâce à la comparaison des résultats expérimentaux des films de cobalt recouverts et non recouverts de cuivre que l'anisotropie générée par la surface était environ de deux à dix fois plus importante que celle de l'interface cobalt-cuivre. Ainsi en tenant compte de cette

information, nous montrons que le modèle de Néel auquel on ajoute la contribution magnétoélastique sous-estime la valeur de l'anisotropie magnétique. La valeur simulée étant inférieure à celle expérimentale est probablement liée au fait que nous avons négligé le terme d'interaction dipolaire dans notre simulation.

Bibliographie

- [1] D. Sanders, Rep. Prog. Phys. **62**, 809 (1999).
- [2] P. Bruno, J. Appl. Phys. **64**, 3153 (1988).
- [3] Rodrigo Arias et D. L. Mills, Phys. Rev. B **59**, 11871 (1999).
- [4] H. Fujiwara, H. Kadomatsu et T. Tokunaga, J. Mag. Mag. Mater. **31-34**, 809 (1983).
- [5] D.S. Chuang, C. A. Ballentine et R. C. O'Handley, Phys. Rev. B **49**, 15084 (1994).
- [6] O. Heckmann, H. Magnan, P. Le Fèvre, D. Chandesris et J. J. Rehr, Surf. Sci. **312**, 62 (1994).

Chapitre 10

Conclusion générale

Ce travail de thèse présente une étude des dépôts de cobalt réalisés sur deux surfaces vicinales de cuivre Cu(1 1 11) et Cu(115). Il comporte des mesures de magnétisme par effet Kerr magnéto-optique ainsi que des expériences de microscopie à effet tunnel (STM) permettant de caractériser la morphologie des films. L'EXAFS de surface au seuil K du cobalt nous a permis de déterminer précisément la structure des dépôts.

Les mesures de Kerr magnéto-optiques montrent que les films de cobalt déposés sur Cu(1 1 11) et Cu(115) présentent une anisotropie magnétique uniaxiale avec un axe de facile aimantation parallèle aux bords de marche i.e. la direction $[1\bar{1}0]$ tandis que la direction dans le plan du film perpendiculaire aux bords de marches est un axe difficile. Nous avons utilisé le modèle de Stoner-Wohlfarth afin de quantifier cette anisotropie uniaxiale. Ce modèle décrit le retournement de l'aimantation lorsqu'un champ extérieur est appliqué. L'hypothèse majeure de cette théorie est de considérer que ce basculement de l'aimantation s'effectue de manière cohérente. L'énergie d'anisotropie d'après Stoner-Wohlfarth s'écrit sous la forme de deux termes : un terme d'anisotropie biaxiale avec la constante K_4 auquel s'ajoute un terme d'anisotropie uniaxiale décrit par la constante K_u . Grâce aux cycles Kerr obtenus selon l'axe difficile $[n\bar{n}\bar{2}]$ perpendiculaire aux bords de marches, nous avons déterminé les constantes K_4 et K_u en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée sur chacun des substrats. Nous avons utilisé deux méthodes d'extraction des constantes d'anisotropie : une méthode appelée méthode *classique* généralement utilisée dans la littérature et la méthode dite de *Millev* plus récente pour laquelle contrairement à la première, aucune hypothèse simplificatrice n'est effectuée. Grâce à des simulations de cycles Kerr à partir des valeurs de K_4 et K_u que nous avons déterminées, nous montrons que la méthode de *Millev* reproduit fidèlement les cycles Kerr expérimentaux contrairement à la méthode *classique*, ce qui confirme les observations faites par Oepen [1].

D'après les résultats expérimentaux nous montrons que les films déposés sur Cu(115)

présentent une anisotropie uniaxiale supérieure à ceux évaporés sur Cu(1 1 11) à épaisseur de cobalt équivalente. Nous observons également que pour les deux substrats, l'anisotropie uniaxiale diminue légèrement avec l'épaisseur. Afin d'expliquer cette variation avec la quantité de cobalt déposée, nous avons étudié la morphologie ainsi que la structure des dépôts.

Les expériences de STM montrent que le cobalt ne décore pas les bords de marches au début de la croissance, contrairement à ce qui est observé sur d'autres substrats (Pt(997) [2]). Entre 1 et 3 MC de cobalt, nous observons des îlots ayant des tailles comparables sur Cu(1 1 11) et Cu(115). La taille latérale de ces îlots ne semble donc peut dépendre de la densité de marches. Pour des films plus épais, le film se réorganise et le réseau de marches réapparaît. Sur Cu(1 1 11), nous observons des terrasses et des marches doubles par rapport au substrat de cuivre initial. Sur Cu(115), nous avons mis en évidence un facettage de la surface (115) en faces ascendantes (113) suivies de terrasses (001). Ce facettage s'accompagne d'une autoorganisation des marches. Ces dernières ondulent en phase comme ce qui a été observé par Maroutian et al. lors de l'évaporation de cuivre sur la surface Cu(1 1 17) où la croissance du cuivre s'effectue par avancée des marches ("step-flow growth") [3].

Les expériences d'EXAFS de surface ont permis de suivre l'évolution de la structure du cobalt en fonction de l'épaisseur du dépôt et du substrat. Les informations structurales ont été extraites des spectres EXAFS grâce aux logiciels FEFF6 et FEFFIT. Ces derniers tiennent compte de la diffusion multiple. Afin de favoriser certaines directions de liaisons, les spectres ont été enregistrés sous trois incidences de photons différentes. L'un des atouts de FEFFIT est qu'il ajuste simultanément les trois spectres théoriques aux trois spectres expérimentaux avec un même modèle, contrairement à la méthode classique d'extraction des données cristallographiques. De plus, FEFFIT permet de simuler les oscillations EXAFS de la première couche de voisins et des atomes plus éloignés et ainsi de valider la structure pour les couches les plus éloignées alors que la méthode classique ne tient compte que de la première couche. Ces mesures montrent que pour des épaisseurs supérieures à 1 MC, le cobalt ne présente pas de relaxation anisotrope dans le plan des terrasses, seuls les petits îlots sur 0,5 MC Co/Cu(1 1 11) ont une distance premiers voisins différentes dans la direction parallèle aux marches et perpendiculaire aux bords de marches. Pour les îlots plus grands (1 à 3 MC), la distance premiers voisins dans le plan des terrasses est légèrement inférieure à celle du cuivre. Nous sommes donc dans le cas d'une épitaxie non pseudomorphe qui peut être expliquée par la relaxation du paramètre de maille aux bords d'îlots. De plus, les différents modèles de clusters utilisés par FEFFIT permettent de confirmer l'interdiffusion cobalt-cuivre à l'interface observée en STM. Pour les films plus épais (5 à 8 MC), la structure est identique à celle observée sur Co/Cu(001) : le paramètre de

cobalt s'étire dans le plan (001) pour s'adapter à celui du cuivre et une relaxation perpendiculaire au plan (001) est observée. Nous obtenons donc une structure tétragonale à faces centrées.

Le modèle magnétoélastique montre que la tétragonalisation de la maille de cobalt contribue à l'anisotropie magnétique uniaxiale. Toutefois, cette contribution de volume est très petite devant les valeurs expérimentales de K_u . Afin de simuler la contribution des atomes de surface et de bords de marches à l'anisotropie uniaxiale, nous avons utilisé le modèle de Néel limité aux premiers voisins. Grâce aux informations fournies par les images STM, nous avons tenu compte dans les calculs de l'ondulation des marches en fonction de l'épaisseur. Nous montrons ainsi que la présence d'îlots et de marches sinueuses diminuent l'anisotropie uniaxiale. En additionnant la contribution magnétoélastique et la simulation avec le modèle de Néel, nous arrivons alors à simuler la variation de l'anisotropie uniaxiale avec l'épaisseur du dépôt. Cependant, ces calculs ne simulent que 60 % des valeurs mesurées expérimentalement. Deux hypothèses sont alors avancées pour expliquer cette sous-estimation. La première est que les modèles utilisés sont des modèles phénoménologiques simples, la seconde est que nous avons négligé dans nos simulations le terme dipolaire. En effet, la forme allongée des îlots le long des bords de marches peut éventuellement générer un terme d'anisotropie de forme. Une des perspectives de ce travail est par conséquent le calcul du terme dipolaire en utilisant les tailles d'îlots mesurées sur les images STM.

En conclusion, nous avons montré pour Co/Cu(11n) que l'anisotropie uniaxiale était principalement due à la morphologie de surface et non à des relaxations structurales. Cette étude réalisée sur des substrats Cu(11n) est à comparer avec celle menée par Dijken sur Co/Cu(001) [4], où l'évaporation du cobalt est effectuée en incidence rasante. Les auteurs montrent que ce type d'évaporation génère une anisotropie magnétique uniaxiale comparable à celle que nous avons mesurée, anisotropie créée par l'apparition d'îlots allongés dans la direction $[1\bar{1}0]$.

Nous avons montré que le couplage de différentes techniques comme le Kerr magnéto-optique, le STM et l'EXAFS de surface offrait une étude relativement complète qui permet grâce aux modèles phénoménologiques de reproduire l'anisotropie mesurée et ainsi de déterminer son origine. Ce couplage de différentes expériences pourra bien entendu être utilisé pour d'autres nanostructures où il est nécessaire de déterminer l'origine de l'anisotropie magnétique tels que Fe/W(001) à marches [5] et Fe/Ag(001) [6] à marches sur lesquels l'anisotropie est dans le plan mais perpendiculaire aux bords de marches. Dans ces systèmes, l'anisotropie est interprétée en supposant des relaxations structurales dans le film. L'un des avantages de ces systèmes est que contrairement aux films de cobalt sur Cu(11n), les atomes du substrat et de l'adsorbat sont très différents ainsi il sera possible de les distinguer en STM, mais également en EXAFS de

surface. Enfin l'étude des propriétés magnétiques des nanostructures peut être réalisée avec de nouvelles techniques développées récemment : citons par exemple le STM polarisé en spin qui permet de visualiser les domaines magnétiques à l'échelle atomique [7][8] et le dichroïsme magnétique (circulaire et linéaire) [9][10] qui permet de mesurer l'anisotropie du moment orbital en étant chimiquement sélectif.

Bibliographie

- [1] H. P. Oepen, Y. T. Millev, H. F. Ding, S. Pütter et J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **61**, 9506 (2000).
- [2] P. Gambardella, M. Blanc, L. Bürgi, K. Kuhnke et K. Kern, *Surf. Sci.* **449**, 93 (2000).
- [3] T. Maroutian, L. Douillard et H. J. Ernst, *Phys. Rev. B* **64**, 165401 (2001).
- [4] S. van Dijken, G. Di Santo et B. Poelsema, *Phys. Rev. B* **63**, 104431 (2001).
- [5] Hector C. Mireles et J. L. Erskine, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037201-1 (2001).
- [6] Y. Z. Wu, C. Won et Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **65**, 184419-1 (2002).
- [7] A. Kubetzka, M. Bode, O. Pietzsch et R. Wiesendanger Wu, *Phys. Rev. Lett* **88**, 057201 (2002).
- [8] O. Pietzsch, A. Kubetzka, M. Bode et R. Wiesendanger Wu, *Phys. Rev. Lett* **84**, 5212 (2000).
- [9] D. Weller, J. Stöhr, R. Nakajima, A. Carl, M. G. Samant, C. Chappert, R. Mégy, P. Beauvillain, P. Veillet et G. A. Held, *Phys. Rev. Lett* **75**, 3752 (1995).
- [10] Sarnjeet S. Dhesi, Gerrit van der Laan, Esther Dudzik et Alexander B. Shick, *Phys. Rev. Lett* **87**, 067201 (2001).

Chapitre 11

Conduite du projet de recherche

11.1 Introduction

Ce dernier chapitre aborde le travail réalisé lors de ma thèse sous l'angle d'un projet professionnel mené durant ces trois dernières années. Il permet de présenter rapidement le contexte de ce travail, les moyens mis en œuvre sans oublier les compétences qu'il m'a permises d'acquérir. Cette thèse de doctorat en physique expérimentale intitulée "Magnétisme, structure et morphologie des films minces de cobalt déposés sur des surfaces à marches de cuivre Cu(1 1 11) et Cu(1 1 5)" a été réalisée dans l'équipe de Dominique Chandèsris au Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique (LURE, Orsay). Cette activité de recherche a été ponctuée par des enseignements à l'Université Paris XII (Créteil) auprès d'étudiants de DEUG première et deuxième année de Sciences de la Matière.

11.2 Rapide présentation du travail de thèse

11.2.1 Présentation de mon domaine de recherche

Mon travail de thèse s'inscrit dans le domaine des objets magnétiques de taille nanométrique. Depuis une dizaine d'années, les dépôts de nanoobjets ou de films minces de matériau magnétique sur des substrats monocristallins ont permis l'élaboration d'une nouvelle classe de matériaux aux propriétés magnétiques originales. Ces objets, ayant des dimensions réduites, ont souvent des propriétés différentes de celle d'un bloc massif du même matériau. Leurs propriétés magnétiques singulières intéressent tout particulièrement les industriels pour leurs perspectives d'application notamment dans le domaine du stockage de l'information, en effet ces petits objets peuvent être considérés comme des aimants de taille nanométrique pouvant coder l'information. Face à la course à la miniaturisation, les industriels cherchent à réduire au maximum

la taille de ces objets magnétiques afin d'augmenter la densité de stockage de l'information. En amont de cette recherche appliquée, des études de nature plus fondamentales sont nécessaires pour comprendre et expliquer les propriétés magnétiques de ces petits systèmes.

11.2.2 Problématique de mon sujet de thèse

Mon travail de thèse est une étude fondamentale en physique expérimentale sur des dépôts de cobalt sur des surfaces à marches de cuivre. Ces surfaces vicinales de cuivre présentent d'étroites terrasses (001) de largeur nanométrique séparées par des marches monoatomiques. Nous avons utilisé deux substrats de cuivre à marches afin de comparer l'influence de ces dernières sur le magnétisme : l'un avec des terrasses de trois atomes de large (Cu(115)) et un second avec des terrasses de six atomes de large (Cu(1 1 11)). L'idée première en déposant du cobalt sur des surfaces à marches était de se servir de la nanostructure du cuivre pour créer des rubans de cobalt très étroits. Des mesures de propriétés magnétiques antérieures ont révélé l'existence de propriétés magnétiques différentes entre les films de cobalt déposés sur un substrat de cuivre sans marches (Cu(001)) et un substrat avec des marches (Cu(11n)). Ces différences sont souvent attribuées à des relaxations anisotropes de la structure cristallographique du film de cobalt liées à la présence des marches mais sans aucune justification. L'idée originale de ce travail est le couplage de trois techniques expérimentales ce qui permet une étude assez complète du système jamais réalisée auparavant et ainsi de pouvoir conclure sur l'origine des propriétés magnétiques du cobalt déposé sur le cuivre à marches.

11.2.3 Moyens mis en œuvre

Mon travail a consisté à caractériser les dépôts de cobalt sur des substrats de cuivre à marches, grâce à trois techniques expérimentales : le magnétisme est mesuré par effet Kerr magnéto-optique à l'Institut de Physique et Chimie des matériaux de Strasbourg, la structure grâce à l'EXAFS de surface (Extended X ray Absorption Fine Structure) au Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique à Orsay et la morphologie par microscopie à effet tunnel (Scanning Tunneling Microscopy : STM) au CEA (Saclay). De manière succincte, l'effet Kerr magnéto-optique utilise la propriété suivante : lorsqu'un faisceau lumineux (dans notre cas, un LASER) polarisé linéairement entre en contact avec un matériau magnétique, le faisceau réfléchi par l'échantillon est alors polarisé elliptiquement. Ce phénomène provient de l'interaction d'une onde électromagnétique avec un milieu aimanté. Cette technique permet d'étudier le retournement de l'aimantation d'un matériau lorsqu'un champ magnétique

est appliqué et ainsi de déterminer si le matériau possède des axes préférentiels d'aimantation. L'EXAFS de surface est quant à elle une technique mesurant l'absorption de rayons X par un échantillon en fonction de l'énergie des photons incidents. Elle utilise comme source de rayons X le rayonnement synchrotron. Elle donne accès à l'environnement local d'un type d'atome et ainsi permet de déterminer sa structure cristallographique. Les expériences de STM utilisent l'effet tunnel. Ce phénomène physique expliqué par la mécanique quantique est le suivant : si deux métaux sont suffisamment proches, la probabilité qu'un électron passe d'un métal à l'autre est non nulle. En appliquant une différence de potentiel, il est alors possible de mesurer un courant entre les deux métaux appelé courant tunnel. Il est à noter que ce flux d'électrons est d'autant plus petit que la distance entre les métaux est grande. Ainsi grâce à cette propriété en balayant une pointe de tungstène sur un échantillon et en mesurant le courant tunnel, il est alors possible de remonter à la morphologie de la surface de l'échantillon à l'échelle atomique. Ces trois types d'expérience sont menées dans des bâtis ultra-vide afin d'éviter la contamination de surface. Elles nécessitent par conséquent un équipement de pompage et de nettoyage d'échantillon assez lourd. De plus, devant la forte demande en rayonnement synchrotron, les projets sont soumis à une commission donnant un accord favorable ou non à leur réalisation. J'ai donc du rédiger des projets pour les expériences d'EXAFS accompagné d'une recherche bibliographique et d'une étude de faisabilité. Du fait de l'accès limité au rayonnement synchrotron mais également à la microscopie (STM) et à l'effet Kerr magnéto-optique, un travail approfondi de préparation des expériences a du être fait.

11.2.4 Résultats

L'analyse des résultats expérimentaux a permis de conclure sur les origines des propriétés magnétiques singulières des films minces de cobalt sur des surfaces vicinales de cuivre. Les expériences d'effet Kerr ont montré que l'aimantation du cobalt se positionne de manière préférentielle le long des bords de marches. La microscopie STM a mis en évidence la grande mobilité des atomes de cuivre dès les premiers stades de l'évaporation du cobalt et que le cobalt se dépose sous forme d'îlots allongés le long des bords de marches. Les mesures d'EXAFS de surface montrent quant à elles que la structure du cobalt s'adapte au paramètre de la maille de cuivre dans le plan des terrasses et se contracte dans la direction normale aux terrasses. Grâce à des modèles phénoménologiques, nous avons montré que la contribution majeure à l'origine de l'aimantation le long des bords de marches est due à la forme allongée des îlots dans cette direction et non à une distorsion de la structure dans le plan des terrasses.

11.3 La thèse dans son contexte

11.3.1 Le choix de ma thèse

Le choix de la thèse que j'allais réaliser a été tout d'abord motivé par l'équipe de chercheurs avec qui je travaillerai. La thèse est une aventure scientifique et humaine de trois ans. Je pense que ma priorité était d'être accueillie dans une équipe avec laquelle je serai encadrée. J'avais déjà réalisé au sein du groupe d'EXAFS de surface (LURE) un court stage de maîtrise et mon stage de DEA. Ces deux premières expériences très concluantes m'avaient permis de connaître l'équipe et également de m'offrir un aperçu de leur recherche notamment sur l'EXAFS de surface. Elles m'avaient donné la possibilité également de faire une recherche concrète sur des systèmes bien définis. A la fin du stage de DEA, Dominique Chandesris et Hélène Magnan m'ont alors proposé de faire une thèse. La définition du sujet de thèse avait été établi par l'équipe. Ce sujet permettait d'utiliser les compétences en EXAFS de surface que j'avais pu acquérir lors de mes premiers stages, mais également de découvrir d'autres techniques telles que l'effet Kerr magnéto-optique et la microscopie à effet tunnel. De plus, je pense que le fait d'avoir un sujet comportant une étude assez complète d'un système avec une problématique bien définie ont également dirigé mon choix. Il est à noter qu'à la fin de mon DEA, ma petite expérience de la recherche ne me permettait pas d'estimer la portée du sujet de thèse, ce dernier étant souvent choisi car le thème de recherche qu'il aborde vous intéresse. J'inscrivais alors ma thèse dans un projet professionnel dit académique menant vers une carrière de chargé de recherche au CNRS ou de maître de conférence à l'université. Force est de constater, d'après les statistiques, que seulement 20 à 30 % des doctorants poursuivent une carrière dans le secteur public. Les doctorales organisées par l'université Paris XI m'ont alors aidée à entrevoir la thèse différemment. La vision académique d'une thèse réalisée dans le secteur public est souvent justifiée par des thèmes de recherche très fondamentaux établissant peu de passerelles avec le monde de l'industrie. Je pense que des cours d'initiation au monde de l'entreprise et de gestion de projet permettraient de compléter la formation doctorale sachant que 70 à 80 % des docteurs s'orientent vers le secteur privé. Toutefois, il est à noter que l'université tente de modifier ce cap en mettant en place au niveau du DEUG, des projets professionnels.

11.3.2 La thèse au sein de l'équipe m'accueillant

Cette thèse a été réalisée en collaboration avec une équipe du LURE (CNRS, CEA, Université), F. Scheurer de l'IPCMS (CNRS, Université) et L. Barbier du CEA.

Ce sujet de thèse s'inscrit dans la continuité d'un travail réalisé au sein de mon

équipe d'accueil (LURE) depuis plusieurs années sur différents matériaux magnétiques notamment les films de nickel et de fer déposés respectivement sur un substrat de cuivre et de MgO. Ces études antérieures ont permis de déterminer précisément la structure cristallographique des films de nickel et de fer grâce à l'EXAFS de surface et d'expliquer les propriétés magnétiques singulières de ces dépôts. Dans le cadre de ma thèse, contrairement aux projets précédents menés par l'équipe, trois techniques majeures d'investigation scientifiques ont été utilisées pour l'étude de Co/Cu(11n). Ce projet a donc demandé un travail d'apprentissage et de familiarisation avec deux nouvelles techniques expérimentales : la microscopie à effet tunnel permettant de sonder la morphologie du dépôt et l'effet Kerr magnéto-optique fournissant des informations sur le magnétisme des dépôts.

Le fait d'avoir réalisé ce travail au sein d'une équipe d'un laboratoire important (LURE) est un atout majeur. Le groupe avec lequel j'ai travaillé est responsable de la ligne de lumière DW21 dédiée à l'EXAFS de surface. J'ai donc profité de leur savoir faire ainsi que de leur culture concernant celles d'EXAFS. De plus, de nombreux aménagements ont pu être réalisés sur le bâti expérimental d'EXAFS de surface pour l'adapter à notre étude grâce à l'aide d'un technicien. L'équipe accueille également de nombreux projets extérieurs entraînant des collaborations dans des sujets très divers. Ceci permet un brassage de connaissances scientifiques très intéressant.

11.4 Conduite et organisation du travail

L'organisation du travail s'est basée sur un élément primordial : réaliser les expériences durant les deux premières années de thèse afin de consacrer les six derniers mois à la rédaction du manuscrit. Le temps a été partagé entre les expériences et l'analyse des résultats. Les périodes de traitement des données ont permis d'avoir un certain recul sur les mesures expérimentales et notamment concernant l'EXAFS de surface de pouvoir améliorer le bâti expérimental pour optimiser la qualité des résultats. Le synchrotron fournissant un faisceau de photons en continu (24 h/24), les expériences d'EXAFS de surface ont par conséquent été menées en équipe. Les expériences de STM et de magnétisme réalisées dans deux autres laboratoires se sont déroulées dans d'étroites collaborations ce qui a permis d'exploiter au mieux les données expérimentales. Les discussions scientifiques avec F. Scheurer (Mesures effet Kerr) et L. Barbier (STM) ont été très fructueuses. Malgré la distance, tous deux ont toujours étaient très disponibles pour répondre à mes nombreuses questions.

L'avancement du projet a été possible grâce à un travail d'équipe efficace. J'ai travaillé au quotidien avec Hélène Magnan (LURE) qui m'a appris énormément sur la technique de l'EXAFS de surface. Mon travail d'analyse des données expérimentales a

Expériences	Matériel	Salaires Bruts	Missions	TOTAL
KERR (2mois)	13000	CR1 (2mois) 5950 Allocataire (2mois) 2260 Technicien (15j) 1370	2000	24580
STM (3mois)	14500	IR (3mois) 12840 Allocataire (3mois) 3390 Technicien (1,5mois) 4110 IR (1,5mois) 6420	0	41260
EXAFS (4mois)	20000	IR (4mois) 17120 Allocataire (4mois) 4520 Technicien (4mois) 11000	0	52640
Analyse résultats	Échantillons 2300 Ordinateurs 3000 Logiciels 1500	Allocataire (25mois) 28240 IR (13mois) 55600 CR1 (1mois) 3000 IR (0,25mois) 1000	0	94640
TOTAL	54300	156820	2000	213120

TAB. 11.1: *Bilan financier en euros séparant le coût humain de celui des expériences. Les salaires sont les salaires bruts.*

été accompagné de nombreuses discussions pour comprendre les résultats obtenus. Un second type de réunion s'est alors greffé sur notre travail regroupant tous les membres de l'équipe avec un ou mes deux directeurs de thèse. Ceci m'a permis d'avoir plus de recul sur ce que nous avons fait et ainsi de rebondir sur de nouvelles idées. Ce travail de recherche a également été ponctué par des enseignements auprès d'élèves de DEUG SM à Créteil. Le contact avec les étudiants ainsi que le fait de revisiter des matières que j'avais vues en temps qu'étudiante furent très enrichissantes.

11.5 Bilan financier du projet de recherche

Les expériences réalisées durant ces trois années de thèse ont été financées par deux organismes principalement le CNRS et le CEA à parts égales et le ministère de l'éducation concernant mon salaire. Le bilan que j'ai établi dans le tableau 11.1 en séparant le coût humain du coût lié à l'investissement et au fonctionnement des expériences est une évaluation assez grossière, permettant d'avoir un ordre d'idée concernant le coût de ce projet.

11.6 Bilan des compétences acquises

Ce paragraphe fait l'inventaire des différentes compétences acquises au cours de ces trois années tant au niveau scientifique qu'au niveau de l'organisation du travail

et de la rédaction.

11.6.1 Compétences techniques et expérimentales

Ce travail de thèse par son aspect multitechnique m'a permis de me familiariser avec des bâtis expérimentaux sous ultra-vide. Il m'a également permis d'effectuer de nombreuses manipulations expérimentales en travaillant avec trois équipes et de m'adapter au différent mode de travail de chacune d'entre elles.

11.6.2 Compétences rédactionnelles

Cette thèse a également permis d'accroître mes compétences rédactionnelles à plusieurs niveaux : tout d'abord au niveau de la rédaction de projet d'expérience, mais également grâce à la rédaction d'articles dans des revues scientifiques en anglais (cf. liste publications). La rédaction de mon manuscrit de thèse a également été l'occasion de présenter mes résultats ainsi que les méthodes d'analyses des données expérimentales. Ce travail a bien évidemment donné lieu à une recherche bibliographique approfondie sur internet dans des bases de données afin de connaître l'état de l'art dans les différentes techniques utilisées et également permis de rassembler les différents résultats obtenus précédemment sur des systèmes quasi identiques. Lors de mon activité d'enseignement en tant que monitrice à l'Université Paris XII, j'ai été amenée à préparer les énoncés de TD et TP. Cette expérience m'a donné l'occasion de travailler sur les méthodes pédagogiques à employer pour aborder un sujet et de pouvoir la tester sur une période de trois années. La rédaction de ma thèse a été l'occasion de m'initier au logiciel \LaTeX offrant de multiples possibilités d'organisation du texte et permettant de gérer facilement les nombreuses références bibliographiques.

J'ai écrit ce manuscrit avec un état d'esprit particulier. L'expérience montre que les thèses sont principalement utilisées par les stagiaires et les doctorants. Leur atout majeur est premièrement qu'elles donnent des explications plus détaillées que celles trouvées dans les articles scientifiques qui sont plus synthétiques et qui s'adressent à un public spécialiste. La thèse permet de rappeler les éléments de base permettant une compréhension plus rapide et ensuite d'aborder plus sereinement la lecture d'articles. En second lieu, elle permet souvent de rassembler toutes les connaissances sur un sujet donné et de faire un état de l'art. Ma démarche a donc été d'insister sur ces deux points en essayant d'expliquer de manière la plus pédagogique possible le traitement des données expérimentales et de détailler les modèles utilisés.

11.6.3 Compétences informatiques

Mes stages précédents effectués au LURE en EXAFS de surface dans l'équipe de D. Chandesris m'avaient déjà permis de m'initier à l'analyse des résultats expérimentaux afin d'en extraire la structure du composé étudié. Ce traitement des données expérimentales était alors réalisé grâce à des programmes en turbo pascal. Le principal apport de mon travail concernant l'EXAFS de surface est le fait que j'ai analysé les données expérimentales avec les programmes de l'équipe et que je me suis également servi de nouveaux logiciels (FEFF et FEFFIT) plus performants après avoir suivi une formation d'une semaine. J'ai dû adapter ces logiciels à notre système et écrire grâce à IGOR PRO des macros permettant d'automatiser le traitement des données. Les images STM ont donné lieu à une étude statistique avec l'utilisation du logiciel IMAGE SCAN PRO, permettant de numériser les images et de pouvoir extraire de ces données des statistiques notamment de taille d'îlots ou de largeur moyenne de terrasses par exemple.

11.6.4 Compétences d'analyse des résultats expérimentaux

L'un des domaines de compétences qui a été le plus sollicité durant ces trois années est sans nul doute celui de l'analyse des résultats expérimentaux. Grâce à un travail personnel rythmé par de fréquentes réunions avec l'équipe m'ayant accueillie, de nombreuses confrontations d'idées ont alors eu lieu. Ceci a permis de répondre aux nombreuses questions qui se posaient au fil de l'analyse des données expérimentales et de construire de solides arguments permettant d'expliquer les phénomènes observés.

11.7 Liste de publications et conférences

Le travail de rédaction a été ponctué par la présentation des résultats obtenus. Plusieurs types de communication ont été utilisés pour exposer l'étude réalisée : rédaction d'articles, affiches dans des conférences nationales et internationales et enfin présentations orales régulières de l'avancement de mon travail au sein du Service de Physique et Chimie des Interfaces du CEA (Saclay) et dans mon laboratoire d'accueil (LURE) à Orsay.

11.7.1 Liste de publications

[1] A. Chaumin Midoir, H. Magnan, L. Barbier, P. Le Fèvre et D. Chandesris Appl. Surf. Sci. **188**, 115 (2002).

[2] A. Chaumin Midoir, H. Magnan, F. Scheurer, H. Bulou, L. Barbier, P. Le Fèvre et D. Chandesris, Surf. Sci. à paraître.

[3] H. Magnan, P. Le Fèvre, A. Midoir, D. Chandesris, H. Jaffrès, A.R. Fert et J.P. Peyrade, Surf. Sci. **454**, 723 (2000).

[4] H. Jaffrès, P. Le Fèvre, H. Magnan, A. Midoir, D. Chandesris, L. Ressler, A. Schuhl, F. N. Van Dau, M. Goiran, J. P. Peyrade et A. R. Fert, Phys. Rev. B **61**, 14628 (2000).

[5] P. Le Fèvre, H. Magnan, A. Midoir, D. Chandesris, H. Jaffrès, A. R. Fert, J. P. Peyrade, Surf. Rev. Lett. **6**, 753 (1999).

11.7.2 Conférences

Présentation de mes résultats lors de conférences nationales et internationales :

[1] European Materials Research Society Spring Meeting 2001 (Strasbourg) (affiche)

[2] Relaxation des contraintes dans les structures nanométriques épitaxiées, Séminaire national sur l'épitaxie par jets moléculaires (2000) (St Aigulf).

[3] Journées Surfaces et Interfaces 2000 Paris Jussieu (affiche).

11.8 Conclusion

Le travail de thèse m'a permis durant ces trois années d'aborder des expériences nouvelles. Il m'a également, en dehors des compétences scientifiques, appris à gérer et planifier un projet. Ce chapitre fut, je pense, le plus difficile à rédiger. Toutefois, j'encourage vivement les futurs docteurs à le rédiger afin de faire le bilan de leur travail de thèse et d'avoir un meilleur recul sur ces trois années afin de préparer leur recherche d'emploi.