



**HAL**  
open science

# **Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110).**

Pierre-Olivier Jubert

► **To cite this version:**

Pierre-Olivier Jubert. Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110).. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2001. Français. <NNT : >. <tel-00004054>

**HAL Id: tel-00004054**

**<https://theses.hal.science/tel-00004054v1>**

Submitted on 22 Dec 2003

**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.



HAL Authorization

THÈSE

présentée par

Pierre-Olivier JUBERT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER - GRENOBLE 1

[arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 30 Mars 1992]

Spécialité : Physique

Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures  
épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110).

date de soutenance : le 14 Septembre 2001

COMPOSITION DU JURY :

R. ALLENSPACH  
S. ANDRIEU (rapporteur)  
C. MEYER  
J. MILTAT (rapporteur et président)  
K. OUNADJELA  
J.-L. PORTESEIL.

Thèse préparée au Laboratoire Louis Néel - CNRS - Grenoble  
(Laboratoire lié par convention à l'Université Joseph Fourier-Grenoble 1 et à l'I.N.P.G.)



*A mes parents,  
et à Ariane.*



# Remerciements :

Cette thèse a été préparée au Laboratoire Louis Néel et correspond à la synthèse de mon travail de recherche sur le "fameux" système Fe/Mo(110). Au cours de ces trois ans et demie, j'ai côtoyé de nombreuses personnes, qui de différentes manières, ont contribué à l'aboutissement de ce travail. Par ces quelques lignes, je souhaite les remercier.

En premier lieu, merci à Claire Meyer de m'avoir proposé ce sujet passionnant et de m'avoir encadré et soutenu tout au long de ces trois années. Je tiens à remercier également, Olivier Fruchart qui a co-encadré ce travail, avec qui j'ai apprécié de travailler et j'ai beaucoup appris. Merci aussi à Jean-Christophe Toussaint qui m'a initié aux simulations micromagnétiques. Tous les trois, je vous remercie pour les relectures constructives de ce manuscrit.

Je tiens à remercier les membres du Jury. En particulier, je suis reconnaissant à Jacques Miltat et Stéphane Andrieu d'avoir été rapporteurs de ce manuscrit et d'avoir réalisé ce travail délicat pendant la période estivale. Je remercie Rolf Allenspach d'être venu de Zurich pour juger cette thèse et d'avoir lu en français ce manuscrit, Jean-Louis Porteseil pour tout l'intérêt qu'il a porté à ce travail, Kamel Ounadjela d'avoir accepté de faire parti du jury, et je regrette qu'il n'ai pas pu être présent le jour de la soutenance.

Merci également aux personnes avec qui j'ai eu le plaisir de collaborer : Wolfgang Wernsdorfer tout d'abord, pour les manips avec microsquids et pour les nombreuses discussions, Yves Samson pour les mesures MFM, Dominique Mailly, Vincent Bouchiat et Marc Faucher pour la réalisation des microsquids, Luc Ortega et Annick Liénard pour les caractérisations X, Nancy Collins pour la représentation graphique des simulations, la super équipe de magnétométrie du laboratoire, Fabrice Scheurer et Alain Dérory pour la semaine de manip à l'IPCMS (vive les substrats magnétiques!), Massimo Ghidini pour les mesures de susceptibilité. Enfin, mention toute particulière à Philippe David et Valérie Santonacci pour la qualité de leur travail sur la chambre UHV et pour leur sympathie. Je suis également très reconnaissant envers Dominique Givord de m'avoir accueilli au Laboratoire en stage de DEA, et de m'avoir permis en préambule de cette thèse, de m'initier à la technique de STM lors d'un séjour à Madrid dans le groupe de Rodolfo Miranda.

Si cette période de thèse passée au Laboratoire Louis Néel est pour moi associée à de très bons moments, c'est aussi grâce à l'ensemble des membres du laboratoire que je salue collectivement. Parmi les personnes avec qui j'ai partagé au quotidien la vie du jeune chercheur, il y a les travailleurs masqués de la salle "blanche" et les locataires successifs du magnifique bureau C301, avec dans les rôles principaux : Valerie, Philippe, Sophie, Laurent, Olivier, Simone. Au passage Simone, je te dois une fière chandelle pour ton aide dans les combats de toute dernière minute cet été... La vie au Louis Néel, c'est aussi la vie en dehors du labo avec de très bons souvenirs d'excursions en Montagne ou en Amazonie (merci pour les guides et organisateurs : Olivier, Simone, Laurent, Nora, Marlio, Jan et tous les autres... ), et les grandes parties de football avec l'OM, l'Olympique Magnétisme.

Pour terminer, je souhaite remercier les amis proches et la famille qui m'ont suivi et soutenu tout au long de cette thèse et à qui je dois beaucoup, en particulier mes parents et ma petite soeur Anne-Laure malgré les quelques 700km d'éloignement, et surtout Ariane.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>I CROISSANCE DE NANOSTRUCTURES MAGNÉTIQUES AUTO-ASSEMBLÉES : ÉTUDE DU SYSTÈME Fe/Mo(110)</b>	<b>15</b>
<b>1 Généralités sur la croissance</b>	<b>17</b>
1.1 Notions sur la croissance cristalline . . . . .	17
1.1.1 Définitions et notations . . . . .	17
1.1.2 Croissance épitaxiale et équilibre thermodynamique . . . . .	18
1.1.3 Les différents modes de croissance ; aspects thermodynamiques	19
1.1.4 Croissance 3D : forme d'équilibre . . . . .	22
1.1.5 Considérations cinétiques . . . . .	24
1.1.6 Croissance auto-assemblée/croissance auto-organisée . . . . .	26
1.2 Présentation du système Fe/Mo(110) . . . . .	27
1.2.1 Régime sub-monocouche : . . . . .	28
1.2.2 Relaxation des contraintes : . . . . .	29
1.2.3 Régime des épaisseurs supérieures à 1HA : . . . . .	29
1.2.4 Recuit après croissance à 300K . . . . .	30
1.3 Les spécificités du Dépôt Laser Pulsé . . . . .	31
1.3.1 Principe du dépôt laser pulsé (DLP) . . . . .	31
1.3.2 Spécificités physiques du dépôt laser pulsé . . . . .	32
1.4 Présentation de l'ensemble expérimental . . . . .	34
1.4.1 L'enceinte d'ultra-vide . . . . .	34
1.4.2 Caractérisation des échantillons . . . . .	36
1.5 La couche tampon de Mo(110) . . . . .	41
<b>2 La croissance de Fe/Mo(110) proche de l'équilibre thermodynamique : vers des îlots compacts auto-assemblés</b>	<b>45</b>
2.1 Croissance Fe/Mo(110) dans le régime sub-monocouche . . . . .	45
2.1.1 Croissance sub-monocouche de Fe/Mo(110) par DLP . . . . .	45

2.1.2	Étude cinétique de la nucléation . . . . .	47
2.1.3	Comparaison de la croissance par DLP et par MBE . . . . .	51
2.2	Nucléation d'îlots biseautés de 1nm de haut . . . . .	53
2.2.1	Description de la croissance pour $\Theta > 1$ . . . . .	53
2.2.2	Évolution des îlots biseautés avec $\Theta$ et $T_s$ . . . . .	55
2.3	Croissance d'îlots compacts auto-assemblés . . . . .	58
2.3.1	Morphologie et structure des îlots compacts . . . . .	58
2.3.2	Croissance des îlots en fonction de $\Theta$ et $T_s$ . . . . .	61
2.4	Estimation des déformations élastiques . . . . .	63
2.5	Forme d'équilibre des îlots compacts . . . . .	72
2.5.1	Hypothèses pour les calculs . . . . .	72
2.5.2	Calcul des énergies de surface et d'interface et minimisation . . . . .	73
2.5.3	Approche de Wulff . . . . .	76
2.5.4	Comparaison des modèles avec les observations expérimentales . . . . .	81
2.6	Discussion sur la croissance simultanée des îlots compacts et biseautés . . . . .	86
2.7	Bilan sur la croissance d'îlots auto-assemblés de Fe/Mo(110) . . . . .	88
<b>3</b>	<b>Croissance de Fe/Mo(110) à température modérée</b> . . . . .	<b>91</b>
3.1	Mise en évidence d'une épaisseur métastable . . . . .	91
3.1.1	Dépôt de Fe/Mo(110) à 300K et 400K . . . . .	91
3.1.2	Effet d'un recuit : mise en évidence d'une épaisseur métastable . . . . .	94
3.1.3	Structure cristallographique de la couche d'épaisseur métastable . . . . .	96
3.1.4	Discussion sur l'origine de l'épaisseur métastable de Fe/Mo(110) . . . . .	98
3.2	Bandes de Fer auto-organisées sur Mo(110) . . . . .	100
3.2.1	Nucléation des bandes de Fe sur les marches de Mo . . . . .	100
3.2.2	Contrôle des paramètres des bandes de Fe auto-organisées . . . . .	101
3.3	Croissance à 500K . . . . .	104
3.4	Bilan de la croissance de nanostructures allongées de Fe/Mo(110) . . . . .	108

## II PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES NANOSTRUCTURES DE Fe/Mo(110) 111

<b>4</b>	<b>Propriétés magnétiques de nanoparticules : introduction</b> . . . . .	<b>113</b>
4.1	Le magnétisme des systèmes de dimensions réduites . . . . .	113
4.1.1	Différents types d'énergies magnétiques . . . . .	113
4.1.2	Origine des domaines . . . . .	116
4.1.3	Longueurs et paramètres caractéristiques . . . . .	116
4.1.4	Modèle de Van den Berg . . . . .	119
4.1.5	Simulations micromagnétiques . . . . .	120
4.2	Méthodes de caractérisation . . . . .	122

4.2.1	Mesures par MFM . . . . .	122
4.2.2	Mesures par micro-SQUID . . . . .	124
<b>5</b>	<b>Études d'îlots compacts 3D multidomaines</b>	<b>129</b>
5.1	Mesure des propriétés magnétiques . . . . .	129
5.1.1	Mesure des propriétés magnétiques sur une assemblée d'îlots .	129
5.1.2	Observation des configurations magnétiques à la rémanence par MFM . . . . .	134
5.2	Simulations micromagnétiques pour $H_{app.} // \text{axe facile}$ . . . . .	137
5.2.1	Hypothèses pour les simulations micromagnétiques . . . . .	137
5.2.2	Simulation pour $H_{app.} // [001]$ . . . . .	138
5.2.3	Comparaison énergétique des structures diamant et Bloch . .	146
5.2.4	Effet du tilt de champ, dissymétrisation . . . . .	148
5.2.5	Bilan sur les simulations avec $H_{app.} // [001]$ . . . . .	151
5.3	Dépendance angulaire du renversement d'un îlot . . . . .	153
5.3.1	Mesures par microsquid . . . . .	153
5.3.2	Simulations : $H_{nuc}$ en fonction de $H_{app.}(\varphi)$ . . . . .	159
5.4	Bilan sur le retournement d'un îlot multidomaine . . . . .	163
<b>6</b>	<b>Études d'assemblées d'îlots présentant une rémanence non nulle</b>	<b>165</b>
6.1	Îlots compacts avec une aimantation rémanente . . . . .	165
6.1.1	Propriétés magnétiques en fonction de la taille moyenne des îlots . . . . .	166
6.1.2	Analyse des propriétés magnétiques d'assemblée de particules : modèle de séparation des contributions réversibles et irréver- sibles . . . . .	169
6.1.3	Application du modèle à une assemblée d'îlots de dimensions moyennes $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$ . . . . .	172
6.2	Magnétisme des structures en bandes de Fe/Mo(110) . . . . .	175
6.2.1	Îlots allongés de $\simeq 5\text{nm}$ de haut . . . . .	175
6.2.2	Bandes auto-organisées de Fe de $1\text{nm}$ de haut . . . . .	177
6.3	Discussion et conclusion . . . . .	180
	<b>Conclusion</b>	<b>183</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>188</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>198</b>
	<b>Table des figures</b>	<b>199</b>
	<b>Index des notations</b>	<b>213</b>



# Introduction générale

Le magnétisme de nano-objets (nanomagnétisme) est un domaine de recherche qui connaît un développement considérable. Par nano-objets nous considérons des systèmes où une dimension au moins est réduite. D'un point de vue fondamental, l'intérêt réside dans le fait que les propriétés magnétiques et les processus d'aimantation se trouvent modifiés dès lors que les dimensions des objets deviennent comparables aux grandeurs caractéristiques du magnétisme (longueur d'échange, largeur de parois, respectivement de l'ordre de 10nm à 100nm pour les métaux de transition). De plus, du fait de la réduction de taille les effets d'interface ne sont plus nécessairement négligeables et peuvent modifier les propriétés magnétiques des matériaux.

L'étude des propriétés magnétiques de nano-objets est également motivée par les applications, en particulier dans le domaine de l'enregistrement magnétique. L'utilisation de réseaux de plots nanométriques est une des voies envisagées pour l'enregistrement magnétique à haute densité ("patterned media"). Les plots magnétiques nanométriques sont également des éléments constitutifs des Magnetic Random Access Memory (MRAM). Il est donc important de comprendre et de maîtriser les processus de renversement dans ces nano-objets.

En se limitant aux nano-objets 1D (fils) ou 0D (plots), on peut distinguer deux types de particules magnétiques : les particules strictement monodomaines et les particules multidomaines. Dans le cas des particules les plus petites, qui sont monodomaines, les processus de renversement peuvent être décrits à partir du modèle de Stoner-Wolfarth [Stoner91]. Pour des particules multidomaines, la situation est plus complexe car les modes de retournement ne peuvent plus être décrits par des modèles analytiques simplifiés [Stoner91, Aharoni66]. Les études micromagnétiques actuelles, basées sur une approche numérique, ainsi que les nombreuses études expérimentales montrent une très grande dépendance des processus de renversement avec la taille, la forme et la régularité des particules [Hubert98, Cowburn00, Rave00].

Au cours de ces dernières années la compréhension du nanomagnétisme a avancé considérablement grâce au développement de nouvelles techniques de fabrication et d'investigation. Le développement de ces techniques de caractérisation, structurale et magnétique, rend maintenant possible l'étude de particules individuelles. Pour

l'étude des propriétés structurales, les avancées reposent en particulier sur l'utilisation des techniques de champ proche (STM, AFM). Au niveau de la caractérisation magnétique, citons par exemple la microscopie à force magnétique (MFM), les microsondes de Hall, la microscopie de Lorentz, la microscopie électronique à balayage avec analyse de polarisation (SEMPA) et la magnétométrie micro-SQUID. Par ailleurs, les techniques de simulation micromagnétique ont également bénéficié des avancées technologiques en moyens de calculs numériques, qui nous permettent maintenant de traiter et de caractériser des systèmes 3D de dimensions de l'ordre de 100nm. Les progrès dans le domaine de la fabrication par lithographie permettent de contrôler la taille et la forme quelconque des particules à l'échelle nanométrique. Récemment, des techniques d'auto-assemblage et d'auto-organisation ont été adaptées à la fabrication de structures magnétiques : plots [Voigtländer91], fils [Elmers94, Hauschild98b]. Par rapport aux approches les plus courantes (lithographie de couches continues épitaxiées), ces techniques offrent l'intérêt de produire des structures de haute qualité cristalline avec une bonne définition d'interface, permettant d'éliminer les défauts de bord liés à la lithographie. Compte tenu de ces avantages, les structures auto-assemblées se présentent comme des systèmes modèles pour des études fondamentales.

L'objectif de cette thèse est l'étude du retournement d'aimantation d'une particule modèle de Fer épitaxiée sur la surface (110) de Molybdène, avec des caractéristiques morphologiques et structurales très bien définies.

Une partie importante de ce travail a donc été consacrée à la croissance. Dans ce manuscrit, la fabrication et la caractérisation des nanostructures de Fe épitaxiées sur Mo(110) sont décrites dans la *Partie 1* (CHAP. 1-3) et l'étude de leurs propriétés magnétiques dans la *Partie 2* (CHAP. 4-6).

Pour la fabrication des particules modèles, nous avons utilisé une méthode de croissance par auto-assemblage. Dans le *Chapitre 1*, nous rappelons tout d'abord des notions sur la croissance cristalline qui sont utilisées par la suite dans la description des résultats. Dans ce chapitre sont également rappelées les données de la littérature sur le système Fe/Mo(110) et des précisions expérimentales. Nous avons observé que la croissance de Fe présente en fonction de la température deux régimes qui sont présentés successivement dans les chapitres 2 et 3. Le *Chapitre 2* donne les résultats de la croissance à haute température, qui permet la fabrication d'îlots 3D compacts auto-assemblés de Fe. Le *Chapitre 3* décrit la croissance de Fe dans le régime de température modérée, et la fabrication d'un réseau auto-organisé de nano-bandes de Fe, alignées le long des marches de Mo(110). La caractérisation structurale a été réalisée en utilisant des techniques de champs proches (AFM, STM) pour étudier la morphologie des dépôts et des techniques de diffraction (rayons X, RHEED) pour étudier la cristallinité.

La *Partie 2* de ce manuscrit correspond à la description des propriétés magnétiques des différentes nanostructures de Fe auto-assemblées ou auto-organisées sur Mo(110). Le *Chapitre 4* rappelle d'abord des notions générales sur le magnétisme dans des structures de dimensions réduites, ainsi que des précisions expérimentales. Le *Chapitre 5* présente les mesures et une analyse des modes de retournement intervenant dans des îlots multidomaines de Fe de forme compacte et non ellipsoïdale. Ces structures présentent à la rémanence des configurations avec fermeture de flux et les modes de retournement se font par nucléation et annihilation de parois. Les caractérisations des propriétés magnétiques des îlots de Fe sur Mo sont réalisées à l'aide des techniques macroscopiques classiques sur l'assemblée de particules, et sur une particule individuelle avec les techniques de MFM et de micro-SQUID pour préciser les modes de renversement dans un îlot. Les simulations micromagnétiques complètent la description des modes de retournement dans ces particules. La structure et la morphologie étant précisément déterminées, les propriétés magnétiques sont reliées à la forme non ellipsoïdale des îlots. Le *Chapitre 6* rassemble enfin des résultats magnétiques préliminaires pour des assemblées d'îlots compacts de taille réduite, des îlots plats allongés et des nano-bandes de Fe. Les cycles d'hystérésis pour ces trois systèmes présentent une rémanence non nulle. Ils ont été analysés en utilisant une méthode fondée sur la séparation des contributions réversibles et irréversibles permettant d'extraire le comportement magnétique moyen d'une particule individuelle.



## Première partie

# CROISSANCE DE NANOSTRUCTURES MAGNÉTIQUES AUTO-ASSEMBLÉES : ÉTUDE DU SYSTÈME Fe/Mo(110)



# Chapitre 1

## Généralités sur la croissance

### 1.1 Notions sur la croissance cristalline

Dans cette section, nous introduisons les idées sous-jacentes à la croissance cristalline. Notre objectif est de rappeler, de manière générale, les notions utiles à la description des phénomènes mis en jeu au cours de la croissance épitaxiale. Certaines de ces notions seront détaillées plus spécifiquement au cours de la présentation des résultats (CHAP. 2. et CHAP. 3.).

#### 1.1.1 Définitions et notations

Avant de rentrer dans le vif du sujet, nous présentons quelques définitions et notations que nous allons utiliser.

- *La monocouche*, MC, est définie par la densité d'atomes nécessaires à la constitution d'un plan atomique complet d'un monocristal massif. Cette unité dépend donc du matériau et de l'orientation du plan à constituer. Dans les tout premiers stades de croissance d'une couche mince une différence de paramètre de maille importante par rapport au massif peut exister, positive ou négative. La complétion d'un plan d'atomes requiert alors un nombre non entier de MC. Dans le cas qui nous intéresse, les monocouches de Fe(110), de Mo(110), et de W(110) représentent respectivement une densité d'atomes de  $17.22 \times 10^{14} \text{at/cm}^2$ ,  $14.27 \times 10^{14} \text{at/cm}^2$  et  $14.11 \times 10^{14} \text{at/cm}^2$ . Lors de l'épitaxie de Fe/Mo(110), la première couche atomique de Fe a la même densité que la surface de Mo et correspond par conséquent à 0.83MC. L'intérêt de cette unité est qu'elle mesure la quantité de matière indépendamment du mode de croissance et des déformations (pas toujours connus). Cependant, la morphologie et les propriétés physiques d'une couche sont souvent reliées plus directement

au nombre réel de plans atomiques de la couche qui est une grandeur locale et de valeur entière. De ce fait, nous introduisons une autre unité qui décrit le nombre de plans atomiques effectivement empilés dans une couche ou un îlot : *l'unité de plan atomique*, notée  $HA$  (hauteur atomique). Les caractéristiques des dépôts pourront donc être décrits à partir de ces deux catégories d'unités : l'une calibrée par rapport au massif, l'autre décrivant ce qui est observé expérimentalement. Pour le premier plan atomique de fer on aura la correspondance  $1HA = 0.83MC$ .

- *Le taux de couverture*,  $\Theta$ , caractérisera la quantité de matière déposée par unité de surface de l'échantillon. Exprimé en  $HA$  il correspondra à l'épaisseur en nombre de plans atomiques qu'aurait le film s'il était parfaitement continu. Exprimé en  $MC$ , le taux de couverture caractérisera le volume de fer déposé, calibré sur le massif. Pour des taux de couverture élevés, le nm se substituera à la  $MC$  en conservant une description calibrée sur le massif. On peut noter que la balance à quartz mesure le taux de couverture calibré par rapport au massif. Pour la description des hauteurs des structures déposées, comme pour leurs longueurs et largeurs, nous utiliserons les unités  $\text{Å}$  et nm correspondant aux distances mesurées expérimentalement par AFM ou STM.

### 1.1.2 Croissance épitaxiale et équilibre thermodynamique

A l'équilibre thermodynamique, à chaque processus atomique correspond son complémentaire allant dans le sens opposé avec la même vitesse, par exemple la condensation et la ré-évaporation. Il n'y a alors pas de croissance nette, le système est stationnaire et l'ensemble des quantités macroscopiques restent inchangées, même si les processus microscopiques ne sont pas arrêtés. La croissance cristalline est donc en toute rigueur toujours un processus hors de l'équilibre thermodynamique, et l'état final de la croissance est nécessairement influencé par la cinétique. Le dépôt sur un substrat est rendu possible par la sursaturation du gaz d'atomes à déposer qui conduit à une condensation des atomes sur le substrat plus rapide que leur ré-évaporation. En fait, en fonction des conditions de dépôt, certains des processus microscopiques à la surface de l'échantillon seront cinétiquement limités ou même interdits, ou inversement un équilibre thermodynamique local pourra être atteint. Lorsque les principaux processus microscopiques à la surface de l'échantillon sont localement à l'équilibre thermodynamique, le résultat de la croissance pourra être décrit à partir de considérations thermodynamiques (énergies de surface/interface, relaxation des contraintes élastiques). On parlera alors abusivement d'une croissance à l'équilibre thermodynamique, en sous-entendant, localement à l'équilibre thermodynamique de surface.

### 1.1.3 Les différents modes de croissance ; aspects thermodynamiques

Expérimentalement et à l'équilibre thermodynamique (de surface), on constate trois modes possibles de croissance cristalline, qui sont illustrés sur la Figure 1.1 [Venables84] :

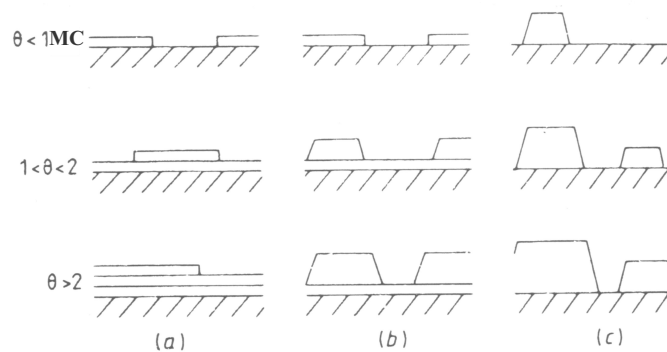


FIG. 1.1 – Représentation schématique de trois modes essentiels de croissance cristalline : (a) croissance 2D ou mode Frank-van der Merwe, (b) croissance 2D puis 3D ou mode Stranski-Krastanov, (c) croissance 3D ou mode Volmer-Weber.  $\Theta$  représente le taux de couverture en nombre de plans atomiques ( $HA$ )

- Dans le mode de croissance tridimensionnel (3D), ou Volmer-Weber, des noyaux nucléent directement sur la surface du substrat et croissent pour former des îlots 3D. (cf. Figure 1.1c).
- Le mode de croissance bidimensionnel (2D), ou mode Frank-van der Merwe, possède les caractéristiques opposées. Les premiers atomes qui s'adsorbent sur la surface forment une couche monoatomique complète en suivant les étapes de nucléation de noyaux, expansion latérale et coalescence. La formation du deuxième plan d'atomes ne débute que lorsque le premier plan est complet et suit le même mode de croissance. La croissance se poursuit ainsi indéfiniment couche par couche. (cf. Figure 1.1a).
- Le mode Stranski-Krastanov est un cas intermédiaire. Après la formation d'une (ou plusieurs) couche(s) monoatomique(s) de mouillage, la poursuite d'une croissance couche par couche devient défavorable et des îlots 3D se forment sur la couche intermédiaire de mouillage (cf. Figure 1.1b). Plusieurs raisons peuvent expliquer l'apparition de ce mode de croissance comme nous allons le décrire au dessous. Il s'avère que ce mode de croissance est le plus courant. Il correspond en particulier à la croissance de Fe sur Mo(110).

Plusieurs facteurs rentrent en jeu dans la détermination du mode de croissance d'un dépôt D sur un substrat S : les énergies de liaison (D-D) et (D-S), la différence de paramètre de maille ( $f = \frac{a_D - a_S}{a_S}$ ), les différences de symétrie cristallographique de surface.

Un premier argument reconnu comme intervenant dans le comportement de la croissance est dérivé de l'échelle macroscopique. Il est fondé sur l'examen des énergies de surface du dépôt D, du substrat S ( $\gamma_D$  et  $\gamma_S$  respectivement), et d'une énergie spécifique de formation d'une interface entre D et S,  $\gamma_{int}$ . Cette approche est utilisée pour prévoir à priori si le matériau D va mouiller le substrat ou non. La variation d'énergie libre de formation d'une couche continue de D sur S,  $\Delta\gamma_{D/S}$ , est donnée par :

$$\Delta\gamma_{D/S} = -\gamma_S + \gamma_D + \gamma_{int} \quad (1.1)$$

Selon cet argument, si  $\Delta\gamma_{D/S} < 0$ , la formation d'une couche continue de D/S est favorable et le mode de croissance sera de type Frank-van der Merwe. Les énergies de surface calculées pour Mo(110) et Fe(110) sont  $\gamma_{Fe(110)} = 2.43\text{J/m}^2$ ,  $\gamma_{Mo(110)} = 3.45\text{J/m}^2$  [Vitos98].  $\gamma_{int}$  est souvent considérée comme faible pour les métaux, donc pour le système Fe/Mo et sera négligée. A partir de cette approche, on s'attend à un bon mouillage de Fe sur Mo.

Cet argument ne permet cependant pas d'expliquer l'évolution d'un mode de type Frank-Van der Merwe (FM), vers un mode de croissance Stranski-Krastanov (SK). Une première cause possible de ces transitions est reliée à un désaccord de symétrie ou de paramètre de maille entre le substrat et les paramètres massifs du dépôt. Pour simplifier, nous allons décrire ci-dessous uniquement la croissance d'un matériau  $D$  sur un substrat  $S$  de même symétrie, mais présentant une différence de paramètre de maille  $f = (a_D - a_S)/a_S$  et avec  $\gamma_D < \gamma_S$ . Ce cas s'applique en particulier au système Fe/Mo(110) qui nous intéresse ( $f = -8.9\%$ ).

$\gamma_D < \gamma_S$  entraîne la formation d'un premier plan atomique de mouillage. Du fait de la différence de paramètre de maille, le matériau déposé doit se déformer pour accorder son paramètre de maille avec celui du substrat. La croissance est qualifiée de *pseudomorphe*. L'énergie élastique associée à cette déformation uniforme croît proportionnellement à l'épaisseur déposée.

La relaxation des contraintes peut se faire par l'introduction d'un réseau de dislocations au delà d'une épaisseur critique  $\Theta_c$ . Les dislocations permettent en effet de rapprocher le paramètre du dépôt de sa valeur à l'état massif. La détermination de l'état d'équilibre, de la structure et de l'énergie des dislocations interfaciales permettant la réduction des contraintes élastiques est un problème complexe. Nous présentons ici un modèle phénoménologique [Jesser67, Bruno89] qui considère de manière continue la compétition énergétique entre une déformation homogène pla-

naire du film et l'introduction d'un réseau de dislocations d'interface, en associant l'énergie des dislocations à une tension de ligne de dislocation  $\mu$  :

$$E_{\text{el}} = \frac{1}{2}VC\epsilon_{//}^2 \quad \text{et} \quad E_{\text{dis}} \approx S\mu\alpha \frac{|\epsilon_{//} + f|}{a_D} \quad (1.2)$$

où  $\epsilon_{//}$  est la déformation élastique du film supposée isotrope,  $V$  son volume,  $C$  une constante d'élasticité du film,  $S$  la surface sur laquelle s'étend le réseau de dislocations,  $\alpha$  un facteur numérique qui traduit l'arrangement géométrique des dislocations et  $f = \frac{a_D - a_S}{a_S}$  la différence de paramètre de maille. L'état d'équilibre est obtenu en minimisant l'énergie totale  $E_{\text{el}} + E_{\text{dis}}$  par rapport à  $\epsilon_{//}$ . On trouve alors que le domaine de stabilité du pseudomorphisme est proportionnel à l'inverse de la différence du désaccord paramétrique :

$$\Theta_c \approx \frac{\mu\alpha}{a_D C f} \quad (1.3)$$

et que pour des épaisseurs supérieures à  $\Theta_c$ , après l'introduction du réseau de dislocations, la déformation décroît de façon inversement proportionnelle avec l'épaisseur :

$$\epsilon_{//} \approx -f \frac{\Theta_c}{\Theta} \quad (1.4)$$

Dans cette approche, la croissance reste bidimensionnelle et est qualifiée de croissance *pseudo-Van der Merwe*. Ce résultat a été vérifié semi-quantitativement expérimentalement, même si le caractère discret des atomes fait que la relaxation intervient plus ou moins par paliers.

Comme nous venons de le voir lors de la présentation du modèle de Bruno, l'énergie associée aux dislocations est proportionnelle à la surface sur laquelle le réseau de dislocations se développe. Les dislocations induisent par conséquent un terme d'énergie d'interface supplémentaire  $E_{\text{dis}} > 0$ . La formation d'îlots compacts peut permettre de diminuer l'énergie du système, en réduisant la surface sur laquelle s'étendent les dislocations, en contrepartie d'une augmentation de l'énergie de surface de  $D$ . La relaxation des contraintes par l'introduction de dislocations au dessus de  $\Theta_c$  peut donc s'accompagner d'une transition vers une croissance tridimensionnelle, correspondant à un mode de croissance Stranski-Krastanov. Le mode Stranski-Krastanov peut se voir phénoménologiquement comme le passage de  $\Delta\gamma_{D/S}^1 = -\gamma_S + \gamma_D + \gamma_{\text{int}} < 0$  à  $\Delta\gamma_{D/S}^2 = -\gamma_S + \gamma_D + \gamma_{\text{int}}^{\text{eff}} > 0$  en considérant  $\gamma_{\text{int}}^{\text{eff}}$  comme une énergie d'interface effective prenant en compte les contributions d'interface d'origine chimique  $\gamma_{\text{int}}$  et la contribution supplémentaire  $E_{\text{dis}} > 0$  liée à la présence des dislocations.

Il faut noter que le mode Stranski-Krastanov peut aussi être obtenu sans que soient introduites des dislocations [Massies94]. La relaxation des contraintes est alors

expliquée par des déformations élastiques sur le bord des îlots, qui permettent d'accommoder partiellement la différence de paramètre de maille (cf. Figure 1.2). Ce type de relaxation peut apparaître pour des faibles taux de couverture pour lesquels les bords des îlots sont importants par rapport à leur volume, donc n'est applicable que pour des îlots nanométriques.

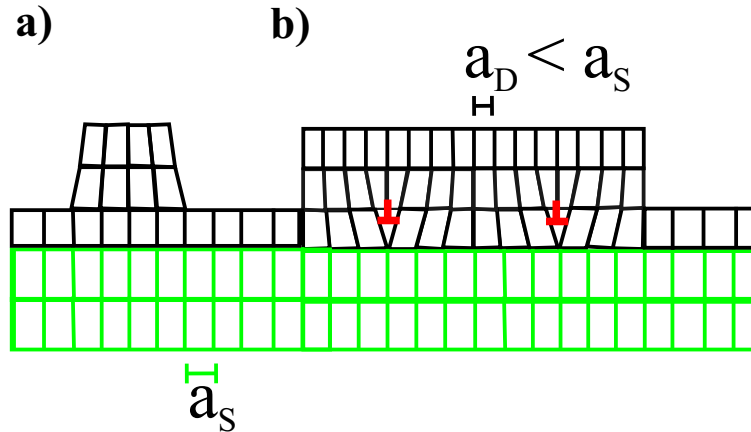


FIG. 1.2 – Schéma représentant deux types de relaxations possibles des contraintes associées à un mode de croissance Stranski-Krastanov : (a) relaxation partielle par déformation élastique en bord d'îlots, (b) relaxation par introduction de dislocations.

#### 1.1.4 Croissance 3D : forme d'équilibre

Dans le cas d'une croissance tridimensionnelle, la forme d'équilibre d'un îlot est celle qui minimise la somme des énergies de surface/interface et de l'énergie élastique du système. Le calcul des contraintes élastiques dans un îlot tridimensionnel epitaxié sur un substrat n'est pas trivial. Les modèles qui prennent en compte les énergies élastiques considèrent en général des variations continues des déformations élastiques et se réduisent à un calcul à 2 dimensions [Tersoff93, Müller98]. Si on considère un îlot relaxé (énergie élastique résiduelle négligeable) et suffisamment gros, c'est à dire pour lequel l'épaisseur est plusieurs fois supérieure à la période planaire des dislocations, l'énergie liée aux dislocations peut être prise en compte phénoménologiquement sous la forme d'une contribution supplémentaire positive à l'énergie d'interface chimique (cf. ci-dessus). Par souci de concision, nous noterons dans la suite  $\gamma_{int}$  cette énergie effective résultante (au lieu de  $\gamma_{int}^{eff}$  plus haut). Dans ce cas simple, la forme d'équilibre d'un cristal peut être obtenue par la construction géométrique du polyèdre de Wulff. La justification de cette construction repose sur le théorème de Wulff, que nous rappelons ci-dessous (d'après [Markov]) :

On considère en premier lieu le cas d'un cristal isolé en équilibre avec sa phase vapeur. Sa forme est alors déterminée par la conservation de l'énergie libre  $F$  du système pour  $T = c^{te}$  et  $V = c^{te}$ . Avec l'hypothèse que le cristal est un polyèdre délimité par différentes faces cristallines d'aires  $S_n$  pour lesquelles correspond une densité d'énergie de surface  $\gamma_n$ . L'équilibre s'accompagne de  $dF = 0$ , soit :

$$-P_V dV_V - P_C dV_C + \sum_n \gamma_n dS_n = 0 \quad (1.5)$$

avec  $P_C$  la pression dans la phase cristalline,  $P_V$  la pression dans la phase vapeur,  $V_V$  et  $V_C$  les volumes des deux phases.  $dV_C = -dV_V$  puisque  $V = V_C + V_V = c^{te}$ , d'où :

$$dF = (P_V - P_C) dV_C + \sum_n \gamma_n dS_n = 0 \quad (1.6)$$

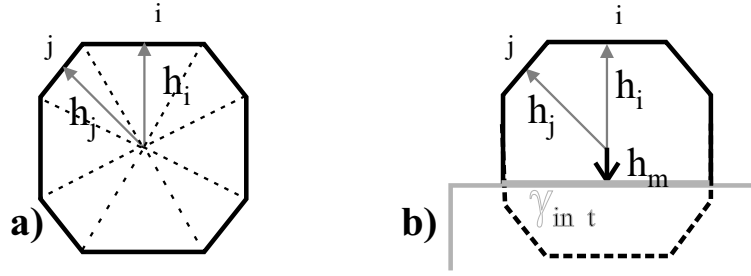


FIG. 1.3 – Constructions (a) de Wulff, (b) de Wulff-Kaichev

On peut exprimer  $dV_C$  de deux manières différentes. Le volume du cristal peut être décomposé en pyramides construites sur les faces du cristal avec un sommet commun à l'intérieur du cristal, comme le montre la Figure 1.3. Alors

$$V_C = \frac{1}{3} \sum_n h_n S_n \quad (1.7)$$

avec  $h_n$  la hauteur des différentes pyramides. Par différentiation :

$$dV_C = \frac{1}{3} \sum (h_n dS_n + S_n dh_n) \quad (1.8)$$

Également, pour des variations infinitésimales,  $dV_C$  peut s'exprimer comme  $dV_C = \sum_n S_n dh_n$ . Par égalité des deux expressions de  $dV_C$ , on obtient  $dV_C = \frac{1}{2} \sum h_n dS_n$  ce qui entraîne :

$$dF = \sum_n [(P_V - P_C) \frac{h_n}{2} + \gamma_n] dS_n = 0 \quad (1.9)$$

Comme la variation de  $dS_n$  est indépendante de chaque terme dans les crochets, la conservation de  $F$  entraîne :

$$\frac{\gamma_n}{h_n} = \frac{(P_C - P_V)}{2} = \text{constante} \quad (1.10)$$

car la différence  $(P_C - P_V)$  ne dépend pas de l'orientation cristalline. Cette relation donne donc les conditions sur la forme du cristal qui minimise les énergies de surface et est connue comme le théorème du Wulff.

De la même façon, on peut déterminer la forme d'équilibre d'un cristal formé sur un substrat de nature différente. Dans ce cas le cristal repose sur une de ses faces ayant pour énergie  $\gamma_m$ , sur le substrat de densité d'énergie  $\gamma_S$ . La densité d'énergie de l'interface est  $\gamma_{\text{int}}$ . On a donc :

$$dF = (P_C - P_V)dV_C + \sum_{n \neq m} \gamma_n dS_n + (\gamma_{\text{int}} - \gamma_S)dS_m = 0 \quad (1.11)$$

En suivant la même procédure on obtient la relation de Wulff-Kaichev :

$$\frac{\gamma_n}{h_n} = \text{constante} = \frac{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_S)}{h_m} = \frac{\gamma_i}{h_i} \quad (1.12)$$

On note que si  $\gamma_i - \gamma_S + \gamma_{\text{int}} \leq 0$ ,  $h_m \leq -2h_i$ . C'est comme si le cristal était noyé dans le substrat, ce qui signifie en fait que le dépôt mouille parfaitement le substrat. On retrouve l'approche thermodynamique utilisant les énergies de surface pour caractériser une croissance de type Franck-Van der Merwe.

### 1.1.5 Considérations cinétiques

Même si les approches thermodynamiques que nous avons présentées peuvent permettre de prévoir grossièrement la morphologie d'un dépôt, le résultat de la croissance s'écarte souvent de ces prédictions. En effet, comme nous l'avons introduit dans le § 1.1.2, l'état final de la croissance peut être influencé par la cinétique, et n'est pas forcément celui de plus faible énergie.

#### ► Description microscopique de la croissance

Les processus microscopiques qui interviennent au cours de la croissance sont illustrés sur la figure 1.4. Un atome de la phase gazeuse qui arrive sur le substrat peut en fonction de sa nature et de son énergie :

- se réfléchir sur la surface et se ré-évaporer immédiatement

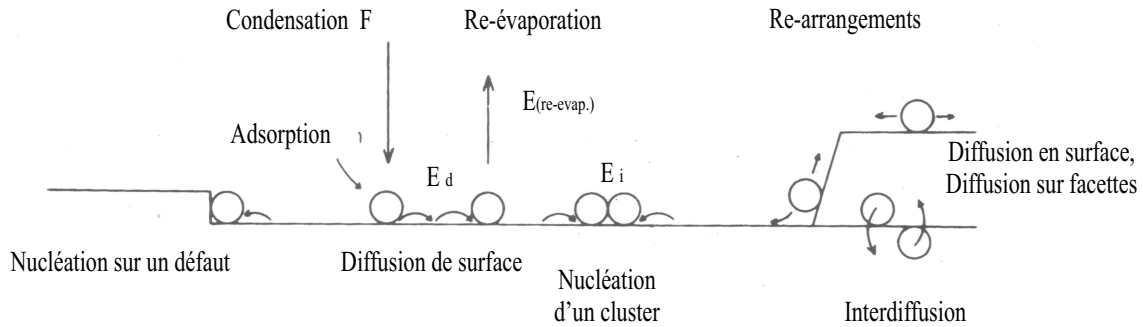


FIG. 1.4 – Diagramme schématique des différents processus et énergies caractéristiques de la nucléation et la croissance sur des surfaces.

- s’adsorber sur la surface, diffuser sur une certaine distance puis se ré-évaporer
- s’adsorber sur la surface, diffuser et former un noyau avec un ou plusieurs autres adatoms. Si la taille du noyau dépasse une taille critique, il devient immobile et forme un noyau stable (*nucléation*). Sinon il se désagrègera
- s’adsorber directement ou après diffusion sur un noyau stable et contribuer ainsi à la *croissance* de ce noyau.

Les îlots formés suite à la croissance des noyaux, ne sont pas nécessairement dans leur état le plus stable et peuvent par la suite se réarranger par des processus de diffusion sur les surfaces de l’îlot, par coalescence, par interdiffusion, ou par l’introduction de dislocations pour réduire les contraintes élastiques. Les étapes principales de la croissance sont donc la nucléation, la croissance des noyaux puis la coalescence et/ou le réarrangement des îlots. Il faut noter que la diffusion de surface joue un rôle prépondérant dans toutes ces étapes.

### ► Temps caractéristiques et cinétique de la croissance

La décomposition de la croissance en différents processus atomistiques a été développée pour décrire quantitativement la cinétique de la croissance cristalline. Il existe à cet effet de nombreux travaux concernant la modélisation de la croissance par une approche cinétique (entre autres revues [Venables84, Brune98a]). Chacun des processus atomistiques décrits ci-dessus est alors associé à un temps caractéristique ou une probabilité de réalisation. Si le processus est thermiquement activé, la probabilité de réalisation de cet événement est décrite par une

loi de Boltzmann avec une énergie d'activation et une fréquence caractéristique de réalisation. Par exemple, la possibilité pour un atome de passer à un site voisin (diffusion) sera caractérisée par un temps  $\tau = \frac{1}{\nu} \exp(E_d/k_B T_s)$  avec  $E_d$  l'énergie d'activation de saut d'un site à l'autre (ou de diffusion),  $T_s$  la température du substrat et  $\nu$  fréquence caractéristique de réalisation de saut. Chaque processus thermiquement activé aura une barrière d'énergie propre (énergies d'activation d'adsorption, de diffusion, de formation ou de dissociation d'un noyau, d'ancrage sur un îlot stable, de désorption, d'interdiffusion ou encore d'introduction de dislocation) et une fréquence de réalisation propre. On peut montrer que les temps caractéristiques de certains processus comme la formation d'un noyau dépendent également de l'environnement de l'adotome et en particulier du flux d'atomes incidents  $F$  et de la quantité de matière déjà déposée  $\Theta$ . Pour les surface réelles, il faut également tenir compte de la présence de "défauts" sur la surface : marches, dislocations ou adsorbats, qui modifient localement les barrières d'énergie de diffusion, d'adsorption ou d'ancrage. Nous reviendrons plus en détail sur ces modèles de cinétique de croissance dans la partie 2.1.2 du CHAP. 2.

### 1.1.6 Croissance auto-assemblée/croissance auto-organisée

Dans cette partie nous introduisons les notions de croissance de systèmes auto-assemblés et auto-organisés. Ces termes ne sont pas définis de manière univoque suivant les communautés scientifiques, et sont parfois fort discutés. En particulier, la limite entre l'auto-assemblage et l'auto-organisation n'est pas toujours évidente. Nous allons redéfinir dans cette partie l'auto-assemblage et l'auto-organisation, tout au moins dans le sens où nous l'entendons dans le cadre de ce travail.

Appliqué à la croissance cristalline sur des surfaces, *l'auto-assemblage* correspond à la croissance spontanée d'objets disjoints et distribués aléatoirement sur la surface de l'échantillon. Ces objets peuvent être des îlots plus ou moins massifs [Elmers94, Nishi99], ou bien des structures allongées (bandes ou fils [Bucher94]). L'auto-assemblage peut être obtenu pour des modes de croissance de type Volmer-Weber ou Stranski-Krastanov, pour lesquels, comme nous l'avons décrit dans la section précédente, il se forme spontanément des structures tridimensionnelles. L'auto-assemblage d'îlots de hauteur mono-atomique peut également être obtenu en considérant un dépôt dans le régime sub-monocouche. Dans les deux cas, la forme et les dimensions des îlots sont reliées à des paramètres thermodynamiques (minimisation locale des contraintes et énergies de surface) et cinétiques. Les caractéristiques des îlots auto-assemblés sont donc susceptibles d'être contrôlées à partir des paramètres de dépôt [Röder93]. La forme des îlots est également influencée par les symétries

crystallines du substrat et du dépôt. Ceci permet par exemple d'obtenir des îlots allongés pour une anisotropie cristalline uniaxiale [Mo89, Bucher94].

L'*auto-organisation* est un cas particulier d'auto-assemblage rencontré lorsque les nanostructures ne nucléent plus aléatoirement sur le substrat mais présentent un ordre positionnel. Les interactions entre les nanostructures (interactions essentiellement élastiques, transmises par le substrat) sont très inférieures aux forces d'adhésion des îlots sur le substrat. La croissance d'îlots auto-organisés n'est de ce fait pas observée sur des substrats sans défauts. Par conséquent, l'auto-organisation de nanostructures ne peut provenir que de la nucléation sur un motif préexistant sur le substrat.

Les motifs naturellement disponibles et présentant des périodicités intéressantes, de l'ordre de 1 à 100nm, sont les surfaces vicinales, les reconstructions de surface, les réseaux réguliers de dislocations, ou encore l'auto-organisation d'adsorbats pour lesquels l'adhésion avec le substrat est plus faible que la répulsion entre domaines d'adsorption comme par exemple dans le cas de O ou N sur Cu(100) [Kern91, Leibsl93].

La croissance par flux de marche sur un réseau de marches atomiques a par exemple été mise à profit pour auto-organiser des fils [Gambardella00] ou bandes [Elmers94, Hauschild98b] de hauteur monoatomique. L'auto-organisation d'îlots plus ou moins massifs a pu aussi être obtenue par nucléation sur des sites spécifiques de la reconstruction en arête de poisson de la surface d'Au(111) [Voigtländer91, Chambliss91]. Une autre approche a été démontrée par Brune et al., consistant à utiliser un réseau de dislocations d'interface de dépôts ultraminces [Brune98b]. Les dislocations induisent une barrière de diffusion qui à basse température ne peut être franchie par les adatoms. Ainsi, un dépôt à 110K d'une fraction de MC d'Ag sur le réseau de dislocations de Ag(2HA, haute température)/Pt(111) produit un réseau régulier d'îlots positionnés à l'intérieur de la zone délimitée par les dislocations.

## 1.2 Présentation du système Fe/Mo(110)

La littérature rapporte depuis 20 ans de très nombreuses études sur le système Fe/W(110). Ce système a été étudié de manière extensive en raison de la possibilité de fabrication de monocouches pseudomorphes de Fer fournissant du fait de la forte anisotropie uniaxiale planaire un système modèle de magnétisme d'Ising bidimensionnel [Gradmann90]. Le système Fe/Mo(110) a été comparativement peu étudié mais les quelques études publiées laissent à penser à une grande similarité de croissance des deux systèmes.

Le fer, le molybdène et le tungstène sont cubiques centrés avec des paramètres de maille respectivement de  $a_{Fe} = 2.866\text{Å}$ ,  $a_{Mo} = 3.147\text{Å}$ ,  $a_W = 3.165\text{Å}$ . Les énergies de

surface calculées sont  $\gamma_{Fe(110)} = 2.43\text{J/m}^2$ ,  $\gamma_{Mo(110)} = 3.45\text{J/m}^2$ ,  $\gamma_{W(110)} = 4.00\text{J/m}^2$  [Vitos98]. Les deux systèmes Fe/Mo(110) et Fe/W(110) ont donc des caractéristiques structurales proches avec comme particularité un fort désaccord paramétrique,  $f=-8.9\%$  et  $f=-9.4\%$ , et une tendance au mouillage ( $\gamma_{Fe} < \gamma_{Mo}$ ,  $\gamma_{Fe} < \gamma_W$ ). La Figure 1.5 présente la symétrie rectangulaire centrée de la surface (110) de Mo. Au cours de la croissance, cette symétrie est conservée avec les relaxions d'épitaxie Fe(110)/Mo(110), Fe[001]//Mo[001] et Fe[1-10]//Mo[1-10] (idem pour W). A partir de considérations thermodynamiques, on s'attend à une croissance de type Stranski-Krastanov avec tout d'abord un mouillage du Fe sur Mo, et à cause de la grande différence de paramètre de maille, à un rôle prédominant de la relaxation des contraintes élastiques.

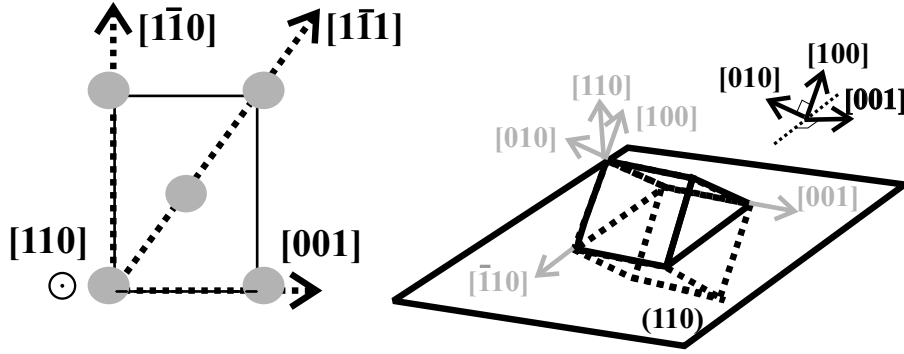


FIG. 1.5 – Représentation schématique de la structure cristallographique d'une surface (110) d'un système cubique centré.

### 1.2.1 Régime sub-monocouche :

Quelque soit la température du substrat, la croissance de Fe sur Mo(110) débute par la complétion d'un plan atomique de mouillage. Celui-ci est pseudomorphe, et donc fortement contraint ( $f = -8.9\%$  (W :  $-9.4\%$ )) [Tikhov90, Gradmann82, Sander98b, Sander99]. Ce plan reste stable à toute température du fait d'une énergie de surface de Fe plus faible que celle de Mo et de contraintes de surface qui compensent partiellement l'étirement du fer [Sander98b].

A température ambiante, la croissance de ce premier plan atomique suit les étapes de nucléation et expansion isotrope des noyaux puis coalescence (Mo : [Malzbender98], W : [Bethge95]). La nucléation se termine à  $0.27\text{MC}$  (W :  $0.24\text{MC}$ ) et les îlots monoatomiques croissent de façon isotrope jusqu'à  $\simeq 0.55\text{MC}$  (W). La coalescence n'est énergétiquement pas favorable et il se forme des canaux autour des îlots monoatomiques. La coalescence est retardée et n'est observée qu'à  $0.65\text{MC}$  (W :  $0.6\text{MC}$ ).

A haute température, la croissance s'initie par flux de marche jusqu'à la complétion du premier plan atomique [Elmers94, Bethge95, Malzbender98]. Ce mode de

croissance est observé lorsque la longueur de diffusion des adatoms est comparable ou supérieure à la largeur des terrasses. Les adatoms ont alors suffisamment de mobilité pour diffuser et se piéger aux bords inférieurs des marches.

### 1.2.2 Relaxation des contraintes :

Après la complétion du premier plan atomique de mouillage, la croissance se poursuit de manière pseudomorphe jusqu'à une épaisseur critique qui dépend essentiellement de la taille latérale des structures (îlots ou bandes), elle même déterminée par la température du substrat. La fin du régime pseudomorphe est ainsi observée pour 1.3-1.5MC(W, [Bethge95]) au dessus de 570K, 1.64MC (Mo, [Tikhov90]) et 1.74MC (W, [Gradmann82]) à 500K. La relaxation des contraintes s'effectue par l'introduction d'un réseau de dislocations qui dépend de l'épaisseur locale de la couche (Mo : [Malzbender98], W : [Bethge95, Hauschild98a]). Il peut donc varier suivant la température et le mode de croissance, ou à l'occasion d'un recuit. Pour des structures de 2HA de taille latérale supérieure à 10nm, il se forme des lignes de dislocation parallèles à [001] avec une densité modérée. Les déformations résiduelles de Fe sont alors de  $\simeq 5\%$  suivant  $[1\bar{1}0]$  et de  $\simeq 10\%$  suivant [001]. Pour des structures de 3HA, le réseau de lignes de dislocations suivant [001] est plus dense et la relaxation est pratiquement complète suivant  $[1\bar{1}0]$ , toujours nulle suivant [001]. Pour des structures de 4HA, un réseau bidimensionnel hexagonal de dislocations se met en place et permet de relaxer presque complètement les contraintes dans le film. Le réseau de dislocations correspond à un ensemble de lignes de dislocation suivant [001],  $[1\bar{1}\bar{1}]$  et  $[1\bar{1}1]$ . Sander et al. ont rapporté des mesures de contrainte in-situ par une méthode optique de mesure de déflexion d'un substrat encastré à une de ses extrémités [Sander98b, Sander99]. Ils montrent qu'après l'introduction d'un réseau de dislocations pour  $\Theta \approx 1.5\text{MC}$ , la croissance n'est libre de toute contrainte résiduelle que pour une température de 1000K. Ils déterminent une contrainte résiduelle de 3N/m.MC pour un dépôt à 300K, et 1N/m.MC pour un dépôt à 700K.

### 1.2.3 Régime des épaisseurs supérieures à 1HA :

- A haute température,  $T_s \gtrsim 550\text{K}$

La poursuite de la croissance à haute température se traduit par la formation d'îlots tridimensionnels, sur une couche de mouillage pour W(110) [Bethge95, Malzbender98] et sur une ou deux couches pour Fe/Mo(110) (non déterminé dans la littérature). La croissance est donc de type Stranski-Krastanov. Les îlots ont une forme hexagonale avec des côtés alignés parallèlement à [001] et  $\langle 111 \rangle$  et leur sommet est plat (facette (110)) indépendamment de la présence de marches atomiques. La taille et la densité des îlots dépendent de

la température et du taux de couverture. L'étude de la morphologie du dépôt à haute température n'a pas été rapportée au delà de 4MC à notre connaissance.

► Régime température modérée,  $T_s \lesssim 550K$

A température ambiante, la croissance couche par couche se poursuit jusqu'à former 2 plans atomiques. La croissance du deuxième plan atomique suit le même schéma de croissance que le premier plan atomique : nucléation, croissance et coalescence retardée. Sur W(110), les îlots du deuxième plan atomique sont allongés dans la direction [001] et la coalescence est retardée suivant  $[1\bar{1}0]$  [Bethge95]. Cette anisotropie de croissance n'est pas observée sur Mo(110) pour une vitesse de 0.03MC/min [Malzbender98]. A partir du début du troisième plan atomique, la croissance plan par plan cède la place au développement de tertres allongés suivant [001]. Cet effet également observé lors de l'homoépitaxie Fe sur Fe(110), est expliqué par une probabilité de collage des atomes sur les marches parallèles à  $[1-10]$  plus forte que sur les marches parallèles à [001] [Albrecht93, Fruchart99a].

### 1.2.4 Recuit après croissance à 300K

Après une croissance à température modérée un recuit peut être utilisé pour reconfigurer la structure et la morphologie de la couche. Le degré des modifications structurales et morphologiques dépend fortement de la température du recuit. Un recuit à une température supérieure à 400K et inférieure à 500K est utilisé pour lisser la surface [Fruchart99a]. A plus haute température, la couche se désagrège pour former des îlots tridimensionnels [Tikhov90, Sander96]. Pour un taux de couverture de  $\Theta = 3\text{nm}$ , après un recuit à 700K, il se forme sur W(110) des nanostructures allongées suivant [001] dont la hauteur maximum est de 17nm [Sander98a]. Il s'avère que la température à laquelle apparaîtra la transition 2D-3D dépend de l'épaisseur de la couche : 500K pour 4MC et 750K pour 20MC. Elle est également associée à une diminution des déformations résiduelles [Tikhov90]. Par ailleurs, bien que réalisant les dépôts sur des métaux réfractaires, la température de recuit est limitée par le risque d'interdiffusion. Dans le cas du système Fe/Mo(110), au delà de températures de recuit de 800 à 860K, Tikhov et Bauer ont détecté des modifications chimiques et structurales par spectroscopie TDS et Auger et par LEED qu'ils attribuent à la formation d'un alliage à l'interface [Tikhov90]. Les mêmes auteurs rapportent une désorption complète du fer à partir de 1120K.

### 1.3 Les spécificités du Dépôt Laser Pulsé

Les études de croissance épitaxiale des métaux nécessitent de contrôler le dépôt à une échelle sub-monocouche. Elles requièrent une arrivée d'atomes isolés et un flux lent (quelques MC/min) et la croissance doit être pratiquée sous ultra-vide ( $10^{-10}$  à  $10^{-11}$  Torr). La technique la plus répandue pour la croissance épitaxiale de métaux est l'évaporation par jet moléculaire (MBE). Dans le cadre de cette étude, nous avons utilisé la technique de dépôt laser pulsé (DLP) qui remplit également ces pré-requis. Dans cette partie nous allons rappeler succinctement le principe du DLP, puis décrire les spécificités de cette technique vis à vis de la croissance épitaxiale (cf. pour détails [Robaut95a]).

#### 1.3.1 Principe du dépôt laser pulsé (DLP)

Dans le cas du DLP la source d'énergie permettant de créer le flux d'atomes est un faisceau laser pulsé. Nous utilisons un laser Nd-YAG doublé en fréquence avec une durée d'impulsion de 10ns et une fréquence de tir de  $\simeq 10$ Hz. Le faisceau de longueur d'onde 532nm est focalisé sur la cible de l'élément à déposer, elle même en regard du substrat. L'énergie apportée par unité de surface, la fluence, est de l'ordre de  $1\text{J}/\text{cm}^2$ . On peut la contrôler en réglant l'énergie du laser (puissance moyenne allant jusqu'à 2W) et/ou sa focalisation sur la cible.

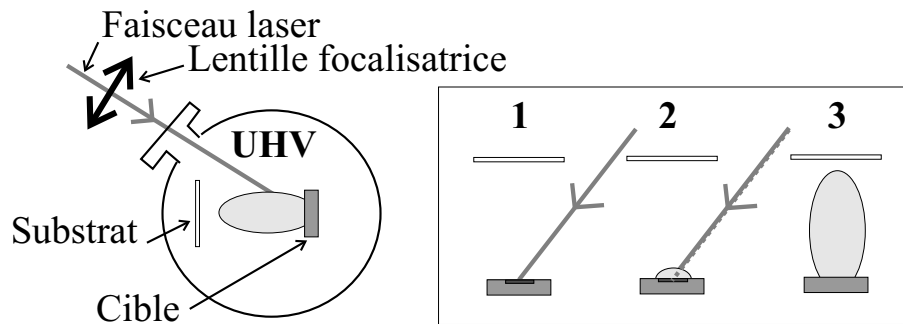


FIG. 1.6 – (a) Schéma de principe du DLP et détail des trois processus se succédant dans le DLP : (1) interaction du laser avec la cible entraînant l'ablation de matériau, (2) interaction du laser avec la matière évaporée menant à la formation d'un plasma partiel, (3) expansion du plasma partiel.

Trois processus interviennent dans le DLP(cf. Figure 1.6) :

- En premier lieu, le faisceau laser interagit avec la cible. La surface de la cible est chauffée localement et portée en fusion au delà d'une fluence seuil, permettant l'ablation d'atomes individuels de la cible. Ce seuil d'ablation dépend du matériau mais également de l'état de surface de la cible. Il est de l'ordre de

- 0.75J/cm<sup>2</sup> pour Y et de 2.5J/cm<sup>2</sup> pour W [Cherief93b]. Au delà de ce seuil, la vitesse d'évaporation augmente très vite avec la fluence [Cherief93b].
- Le laser interagit également avec la matière évaporée, ce qui conduit à la formation d'un gaz partiellement ionisé (par la suite nous utiliserons abusivement le terme de plasma). Pour des fluences égales à 5-10 fois le seuil d'ablation, la vitesse d'évaporation sature car l'absorption du faisceau laser par le plasma de plus en plus dense réduit la fluence effective sur la cible.
  - Le plasma subit ensuite une expansion adiabatique et s'étend de manière directionnelle essentiellement perpendiculairement à la surface de la cible. Les éléments du plasma arrivent sur le substrat avec une énergie comprise entre 1 et quelques 100eV. La distribution d'énergie et le degré d'ionisation des atomes du plasma augmentent avec la fluence utilisée. Au cours de l'ablation de Fe, pour les faibles fluences proches du seuil d'ablation, les éléments du plasma sont des particules neutres et des ions Fe<sup>+</sup>, avec une distribution d'énergie centrée à 10eV [Cherief93b].

### 1.3.2 Spécificités physiques du dépôt laser pulsé

#### ► Flux instantané élevé

Le fait de travailler avec une fluence proche du seuil d'ablation (cf. paragraphe ci-dessous) impose de faibles vitesses moyennes de dépôt (typiquement 0.5Å/min). Cependant, du fait du caractère pulsé de la technique, la vitesse instantanée de dépôt est de 5 ordres de grandeur plus élevée. Un flux important de matière arrive sur le substrat sur une période de l'ordre de 1μs puis le système peut relaxer jusqu'à l'impulsion suivante. Le taux de nucléation pourra dès lors être plus important avec cette technique de dépôt que par MBE pour une vitesse moyenne de dépôt similaire. Cette propriété peut être un avantage pour favoriser une croissance bidimensionnelle. Lors d'une étude comparative, Jenniches et al. ont ainsi mis en évidence une forte amélioration de la croissance bidimensionnelle dans le cas de films de Co/Cu(111) en utilisant le DLP par rapport à la MBE [Jenniches96].

#### ► Énergie élevée des particules incidentes

Comme indiqué précédemment, les atomes et les ions du plasma qui arrivent sur le substrat portent une énergie importante, allant de 1 à quelques 100eV en fonction de la fluence [Cherief93b]. Par comparaison, l'énergie des particules incidentes dans le cadre de la MBE est de l'ordre de 0.1eV. Il a été montré

que cette énergie peut être partiellement et temporairement conservée par les atomes adsorbés et augmenter leur mobilité. Ce phénomène de transfert d'énergie est non destructif pour des énergies inférieures à quelques 10 à 100eV [Burger87, Nagai88]. L'augmentation de la mobilité des atomes en surface, suite au bombardement par les ions et atomes des espèces incidentes, permet d'améliorer la qualité cristalline des dépôts mais permet aussi l'épitaxie à plus basse température. Sankur et al. ont montré par exemple que l'hétéroépitaxie de Ge sur Si était possible à 600K par DLP, alors qu'un dépôt par MBE nécessite une température de substrat de 1300K [Sankur89]. De la même façon, lors de l'homoépitaxie du Fer, la transition entre le régime haute température et le régime basse température pour lequel il apparaît des instabilités de rugosité de surface a été observé à 600K pour une croissance par MBE [Albrecht93], et à 380K par DLP [Fruchart98a, Fruchart99a].

#### ► Congruence et versatilité

Une autre spécificité remarquable du DLP est le fait que la composition de la cible se conserve dans le plasma. L'évaporation de tous les éléments est simultanée car une température de surface de plusieurs milliers de degrés est atteinte presque instantanément au point d'impact laser. Même si cette stoechiométrie peut être légèrement modifiée spatialement lors de l'expansion du plasma, le DLP permet plus facilement que d'autres techniques le dépôt d'alliages à partir d'une cible stoechiométrique et évite le recours au co-dépôt [Robaut95b, Jaren97].

Le dépôt laser pulsé a également l'avantage d'être souple d'utilisation pour l'ultra-vide : la source d'énergie reste à l'extérieur de l'enceinte et on peut remplacer les cibles par simple transfert comme les échantillons, donc sans avoir besoin d'ouvrir à l'air la chambre de dépôt.

#### ► Gouttelettes

Le principal inconvénient de la technique de dépôt laser pulsé est l'éjection de morceaux de la cible et de gouttelettes de taille micrométrique [Fahler97]. Le premier type de débris est lié à une augmentation de la rugosité de la surface au cours de l'ablation. La formation de gouttelettes est elle expliquée comme la conséquence d'une fusion de subsurface, et/ou de la pression de radiation exercée sur la surface fondue de la cible lors de l'expansion du plasma. Ce phénomène sera d'autant plus important que la fluence est élevée. Pour limiter cette pollution, plusieurs approches ont été testées : (1) intervention sur le plasma pour piéger ces débris et gouttelettes (caches mécaniques [Cherief93a], déviation électromagnétique [Fernandez99]), (2) optimisation des paramètres

d'ablation.

La formation des gouttelettes peut être limitée en travaillant très légèrement au dessus du seuil d'ablation. Il est par ailleurs préférable de ne pas travailler à des fluences trop faibles car pour l'obtention d'une même épaisseur de film, il faut plus d'impulsions laser et la cible se détériore plus vite. Nous travaillons en pratique avec des fluences égales à 1.5 à 2 fois la valeur du seuil d'ablation. L'éjection de particules étant liée à l'état de surface de la cible, il est important de repolir régulièrement les cibles et de balayer le faisceau laser sur de larges zones de la cible. En prenant ces précautions, nous avons constaté qu'il est possible, dans le cas de Mo et Fe de s'affranchir presque totalement de cette pollution.

## 1.4 Présentation de l'ensemble expérimental

### 1.4.1 L'enceinte d'ultra-vide

Les échantillons sont réalisés par dépôt laser pulsé dans un ensemble ultra-vide présenté schématiquement sur la Figure 1.7.

Une première enceinte est dédiée au stockage, à la préparation et à l'analyse chimique des échantillons. Elle est équipée d'un carrousel permettant le stockage de 8 cibles ou échantillons, et d'un four pour le dégazage des substrats et d'un ensemble de spectrométrie Auger. Le vide de base est de  $10^{-10}$ Torr.

L'introduction et la sortie des échantillons à l'air se fait par l'intermédiaire d'un sas connecté à la chambre d'analyse. La mise en communication du sas avec la chambre d'analyse est effectuée après pompage du sas par une pompe turbomoléculaire jusqu'à un vide secondaire ( $\simeq 10^{-6}$ Torr).

La chambre de dépôt contient quatre cibles pour le DLP. Le vide de base est de  $2.10^{-11}$ Torr et passe généralement dans la gamme de  $10^{-10}$ Torr pendant les dépôts. Cette chambre est munie d'un ensemble de diffraction d'électrons en incidence rasante (RHEED), d'une balance à quartz pour caractériser les vitesses de dépôt, d'un chauffage du substrat jusqu'à  $\simeq 1100K$  et d'un masque motorisé pour la réalisation de coins en épaisseur.

La troisième enceinte a été rajoutée au cours de ma thèse pour implanter un microscope à effet tunnel commercial de type Omicron UHV STM 1. La pression de base dans l'enceinte est de  $10^{-10}$ Torr. La mise en place du microscope à effet tunnel a nécessité plusieurs modifications dans le dessin de l'enceinte UHV. Il a fallu en particulier rendre compatible le système de plaquettes Omicron avec notre système de transfert de type Molybloc. L'utilisation de ces plaquettes comme support du substrat s'est avérée diminuer la température maximum accessible pour le dépôt.

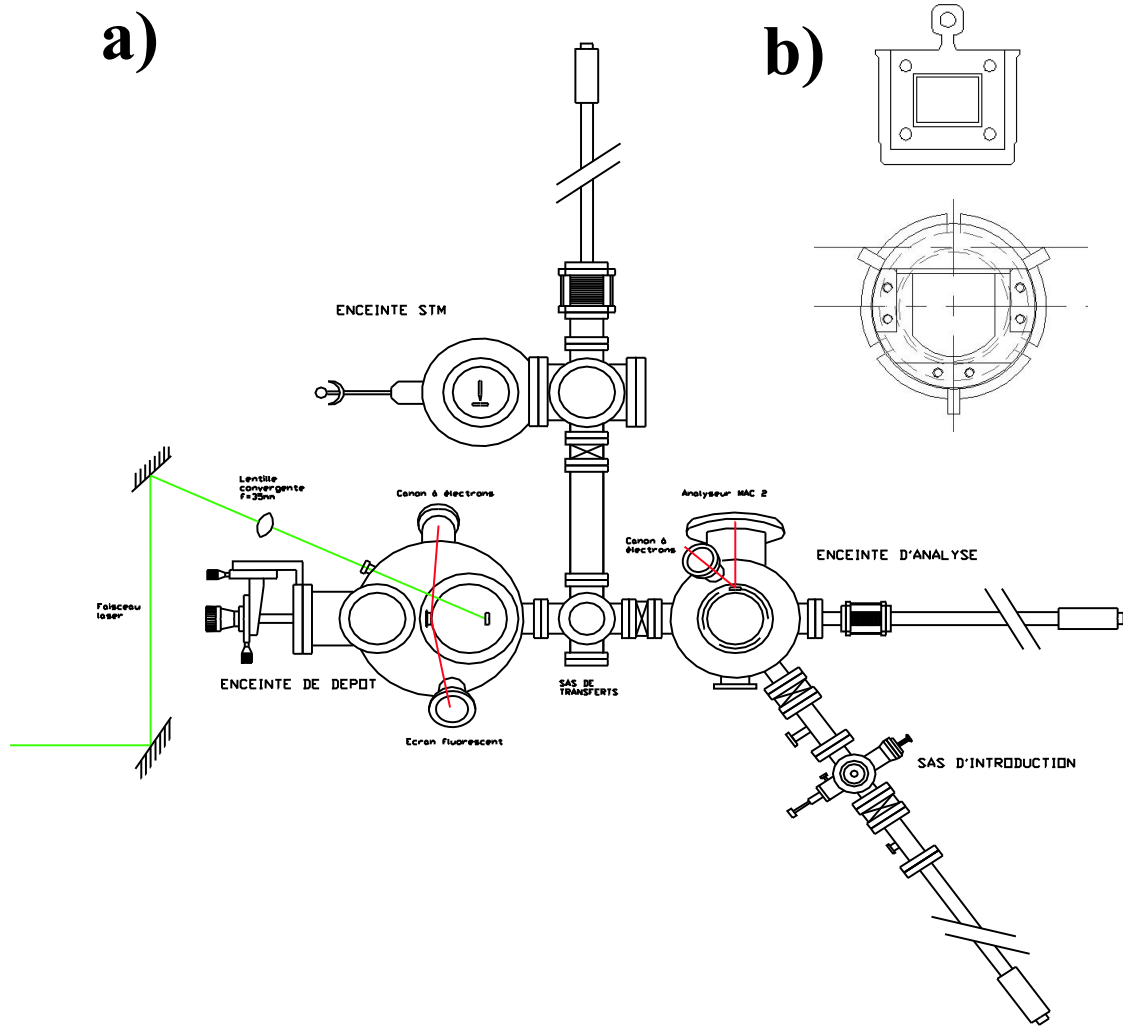


FIG. 1.7 – (a) Schéma de l'ensemble ultra-vide utilisé pour l'élaboration (DLP), et la caractérisation (RHEED, STM, et spectroscopie Auger) des échantillons. (b) Dessins du Molybloc et d'une plaquette STM utilisés comme support des substrats de saphir. Les pièces ont été ajourées pour permettre le chauffage du substrat directement par absorption de la puissance rayonnée par le four.

Pour améliorer le transfert de chaleur entre le four et le substrat, nous avons ajouté le Molybloc et la plaquette de façon à ce que la puissance rayonnée par le four soit directement transférée au substrat. La Figure 1.7b présente les dessins actuels du Molybloc et de la plaquette STM. La découpe laser nous permet d'utiliser des substrats dont les dimensions sont ajustées à l'empreinte réalisée dans la plaquette STM. Environ 2000Å de W ou de Mo sont déposés ex-situ à l'arrière du substrat par sputtering. Cette couche métallique permet d'absorber complètement le rayonnement du four et de le transmettre au substrat (transparent). Ces modifications nous ont permis d'obtenir une température de substrat d'environ 100° supérieure par rapport au montage antérieur à l'implantation du STM. Ces températures ont été calibrées à l'aide d'un pyromètre sur des couches épaisses de Mo(110)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0), et mises en relation avec un thermocouple en contact avec le porte-échantillon, qui nous sert de référence.

### 1.4.2 Caractérisation des échantillons

Les échantillons sont caractérisés par des techniques classiques de la physique des surfaces. Je ne rentrerai pas dans leur description détaillée qui peut être trouvée dans des ouvrages et thèses auxquels je me contenterai de faire référence.

Il faut noter que pour les caractérisations ex-situ, les échantillons sont recouverts d'une couche protectrice de 3nm de Mo pour éviter l'oxydation du fer. Déposée à température ambiante, nous avons vérifié que cette couche ne modifie pas les caractéristiques structurales et morphologiques des nanostructures de Fer. Le choix du molybdène est motivé par le souci de n'avoir qu'un seul type d'interface autour des nanostructures de fer. Cette méthode s'est révélée efficace sur presque toute la durée de la thèse. Nous avons néanmoins eu des problèmes de stabilité pour certains échantillons à la fin de la thèse. Il sera prudent pour les prochaines études de rajouter à cette couche protectrice de Mo, une fine couche d'or ou d'aluminium ou de silicium.

#### ► **Caractérisation de la structure cristalline des échantillons par diffraction d'électrons et de rayons X**

La structure cristalline des échantillons a été caractérisée par diffraction d'électrons (RHEED) et diffraction de rayons X ex-situ. Ces techniques permettent de sonder le réseau réciproque des couches déposées pour caractériser leurs paramètres de maille ainsi que les relations d'épitaxie avec le substrat.

Dans le cas du **RHEED(Reflection High Energy Electron Diffraction)**, un faisceau électronique de haute énergie (10keV dans notre cas) est envoyé en incidence rasante sur l'échantillon. Les électrons diffractés sont visualisés sur un écran fluorescent. La longueur de pénétration des électrons n'étant que

d'environ  $10\text{\AA}$  et du fait de l'incidence rasante, cette technique est sensible à la surface uniquement. Le diagramme de diffraction obtenu décrit alors l'ordre de surface de l'échantillon ainsi que sa topographie. Pour une description du formalisme du RHEED je renvoie à [Mahan90, Fruchart98a]

La **diffraction de rayons X** a été réalisée ex-situ avec trois types de diffractomètre :

- un diffractomètre en géométrie  $\theta/2\theta$  (au laboratoire LLN et au LEPES). Dans cette géométrie, le vecteur de diffusion  $\vec{q}$  est perpendiculaire à la surface et on a accès aux distances inter-atomiques normales au plan de la couche.
- un diffractomètre 4 cercles utilisé pour l'analyse de texture (collaboration avec L. Ortega, laboratoire de Cristallographie). Avec cet appareillage, nous avons étudié les relations d'épitaxie et les paramètres de plans de diffraction pour des angles d'incidence hors du plan. (cf. section 2.4, CHAP. 2).
- un diffractomètre 4 cercles adapté à l'analyse des couches minces en incidence rasante (laboratoire de Cristallographie). Dans cette géométrie, on a accès aux distances inter-atomiques du plan de la couche et aux relations d'épitaxie du substrat et de la couche déposée. (cf. section 3.1.3, CHAP. 3).

#### ► **Caractérisation de la morphologie des échantillons par microscopie de proximité**

Le développement par Binnig et Rohrer du microscope à effet tunnel (STM) dans les années 80 [Binnig82, Binnig87], a ouvert la porte à l'observation directe des surfaces à l'échelle atomique. La microscopie de proximité est de ce fait un outil primordial en physique des surfaces.

Le **principe du microscope à effet tunnel (STM)**[Rohrer] est relativement simple. Une pointe métallique, généralement en tungstène, est approchée de la surface de l'échantillon à une distance de 5 à  $10\text{\AA}$ . A cette distance, les fonctions d'onde de l'échantillon et de la pointe, qui décroissent de façon exponentielle dans le vide, se recouvrent. Si une tension  $V_{\text{gap}}$  est appliquée à l'échantillon, un courant tunnel d'électrons s'établit entre la pointe et l'échantillon. En première approximation dans laquelle la pointe et l'échantillon sont assimilés à deux surfaces planes en regard, le courant tunnel s'exprime comme :

$$I \propto V_{\text{gap}} \cdot \exp(-\sqrt{\Phi}d) \quad (1.13)$$

avec  $\Phi$  le travail de sortie d'un électron et  $d$  la distance entre la pointe et

l'échantillon. Le courant tunnel varie typiquement d'un ordre de grandeur pour un déplacement de  $\approx 1\text{\AA}$  [Binnig82]. Le courant tunnel dépend de façon exponentielle de la distance pointe-échantillon. Par conséquent, en déplaçant la pointe au dessus de la surface, les faibles variations de hauteur, par exemple au passage d'une marche atomique, vont se traduire par des variations notables du courant tunnel. La dépendance exponentielle du courant tunnel va de plus sélectionner comme sonde locale, l'atome ou groupe d'atome le plus proche de la surface. La résolution latérale du STM peut donc aller jusqu'à la résolution atomique. En représentant, en fonction de la position de la pointe au dessus de l'échantillon, le courant tunnel (mode hauteur constante) ou alors la tension à appliquer sur un tube piézo-électrique pour maintenir le courant tunnel constant (mode courant constant), on a accès à une carte de la topographie de la surface de l'échantillon.

Tersoff et Hamman ont démontré en prenant en compte de manière plus réaliste la structure de la surface et de la pointe et dans l'approximation des faibles tensions et basses température, que le courant tunnel s'exprime comme :

$$I \propto V_{\text{gap}} \cdot D(E_F) \cdot \rho(\vec{r}_0, E_F) \quad (1.14)$$

où  $D(E_F)$  est la densité d'état électroniques de la pointe au niveau de Fermi,  $\rho(\vec{r}_0, E_F)$  représente la densité d'états de la surface au niveau de Fermi évaluée en  $\vec{r}_0$ , centre de courbure de la pointe [Tersoff85]. Une image STM s'interprète donc plus précisément comme décrivant une surface iso-densité électronique de la surface de l'échantillon. Dans le cas des métaux, la densité électronique est suffisamment uniforme pour qu'on observe bien la topographie. Mais dans le cas des semi-conducteurs ou des semi-métaux, il y a souvent des effets de structure électronique. Un exemple typique est celui du graphite, comme illustré sur la Figure 1.8.

Le graphite est un composé lamellaire avec une structure hexagonale et un empilement compact (ABAB...), les plans A et B sont décalés d'une demi maille par rapport aux plans voisins. A la surface, il existe deux types d'atomes : ceux qui ont un voisin immédiatement au dessous et ceux qui n'en ont pas. L'environnement électronique qui en résulte n'est pas le même et les électrons au niveau de Fermi sont localisés sur les atomes qui n'ont pas de voisin immédiat. Si l'échantillon est polarisé positivement par rapport à la pointe, les électrons tunnel iront de la pointe vers l'échantillon et les états occupés de la surface sont observés. Ceci explique pourquoi, les images STM du graphite présente une symétrie trigonale qui ne reflète pas la structure atomique de la surface (cf. Figure 1.8b). Lorsque la polarisation de l'échantillon est inversée, on peut sonder alors les états vides en tunnelant de la pointe vers l'échantillon. Sur la

Figure 1.8c, la polarisation de la pointe a été modifiée deux fois au cours du balayage et on observe un décalage d'une demi maille du contraste de l'image.

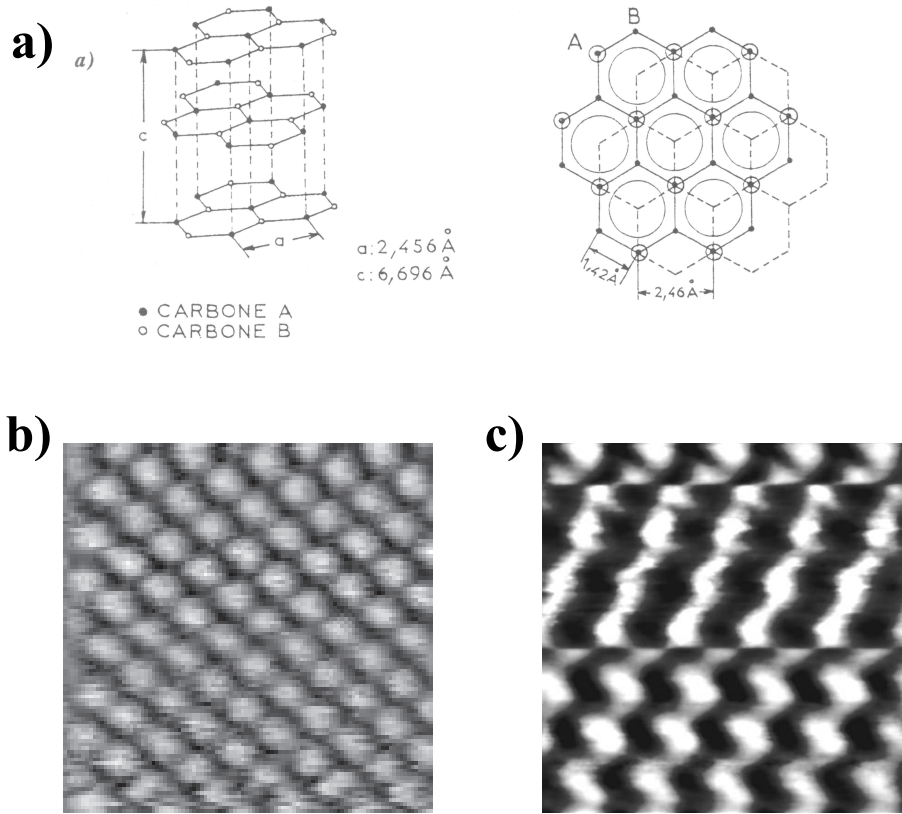


FIG. 1.8 – (a) Structure atomique d'une surface de graphite. (b) Image STM d'une surface de graphite en mode hauteur constante ( $2.5 \times 2.5 \text{ nm}$ ,  $V_{\text{gap}} = +0.1 \text{ V}$ ) (c) Image STM d'une surface de graphite en mode hauteur constante ( $1.5 \times 1.5 \text{ nm}$ ). La polarisation de l'échantillon a été inversée deux fois au cours du balayage, ce qui permet de visualiser le décalage d'une demi-maille entre les atomes présentant un état vide ou occupé.

Le courant tunnel dépend en définitive de la densité d'état électronique à une tension  $V_{\text{gap}}$  de polarisation donnée. En faisant varier cette valeur, il est possible de sonder la densité d'état électronique de la surface. On obtient ainsi une information spectrale de la surface, avec la résolution spatiale du STM [Avouris90]. Avec l'hypothèse d'une densité d'états constante dans la pointe, on a :

$$\frac{dI}{dV} \propto \rho(\vec{r}_0, E_F + e.V) \quad (1.15)$$

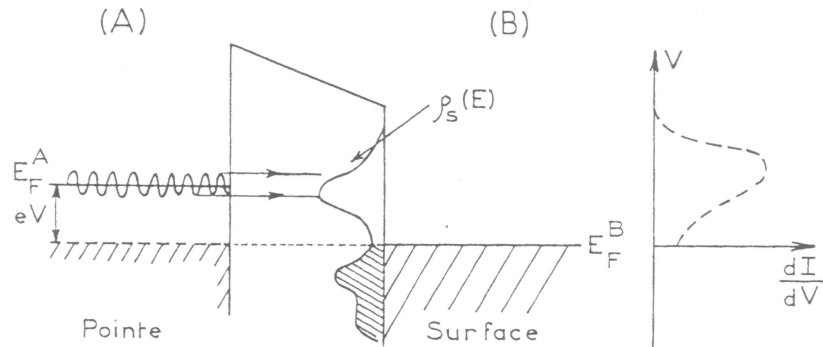


FIG. 1.9 – Schéma de principe de la spectroscopie tunnel dans l'approximation d'une densité d'état de pointe constante.

Cette technique de spectroscopie peut trouver également une extension à l'observation du magnétisme à l'échelle atomique avec la mesure de densités d'états de surface magnétiques. C'est le principe du STM polarisé en spin [Bode98]. Il faut noter que la mise en oeuvre pratique et l'interprétation de la spectroscopie tunnel sont extrêmement délicates, particulièrement pour les métaux.

Le STM que nous utilisons au laboratoire est un microscope commercial de type Omicron UHV STM 1. Il a été implanté sur l'enceinte ultra-vide au cours de ma thèse et a permis de réaliser des observations topographiques in-situ. Les pointes sont en tungstène et préparées par voie électrochimique dans NaOH (5 mol/L). La taille maximum de balayage est de 1000nm × 1000nm. Il est possible de se déplacer latéralement grâce à un système "slip/stick" sur plusieurs millimètres. Nous avons utilisé pour l'imagerie des surfaces de Fer et de Molybdène, un courant de régulation compris entre 0.1 à 0.5nA et une tension de polarisation appliquée à l'échantillon de  $V_{\text{gap}} = +0.1\text{V}$ . Les substrats de saphir étant isolants, il a fallu mettre au point un système de patte mobile pour assurer le contact électrique entre les surfaces à observer et le porte-échantillon du STM. En raison de l'effet d'ombrage du dépôt par DLP, la patte doit être tournée in-situ à l'aide du manipulateur de type "wobblestick" avant les observations.

**La microscopie à force atomique (AFM)** est une technique à sonde locale dérivée du principe de fonctionnement du STM. Les interactions qui permettent de sonder la topographie de la surface sont dans ce cas les forces de Van der Waals entre une pointe et l'échantillon. Ces forces variant en fonction puissance de la distance pointe-échantillon, la sensibilité de l'AFM est

moins bonne que celle du STM : la résolution verticale de l'ordre de 1Å, et la résolution latérale de l'ordre du nanomètre.

En AFM, deux modes de mesure sont utilisés : un mode statique ou mode contact, et un mode de résonance ou mode non contact. Dans le mode contact, la pointe est amenée au contact de la couche et le levier subit une déflexion. La rétroaction sur la hauteur de l'échantillon pour maintenir la force constante, ou pratiquement une déflexion constante du levier, est utilisée au cours du balayage de la surface de l'échantillon pour déterminer sa topographie. En mode non contact, le levier est mis en vibration par l'excitation de sa base à l'aide d'une lame piézo-électrique. La pulsation de vibration du levier est modifiée en fonction de la hauteur de vol du fait de l'interaction pointe/échantillon. Le décalage de la pulsation par rapport à la pulsation de résonance du levier modifie l'amplitude de vibration du levier. La rétroaction sur la distance pointe échantillon, de manière à garder constante cette amplitude de vibration, permet d'avoir accès à la topographie de l'échantillon.

La microscopie AFM est réalisée sur un Autoprobe CP de ParkScientific Instruments. Le levier et l'ensemble optique de mesure de la déflexion du levier sont fixes. Le balayage est effectué par l'échantillon qui est monté sur un tube piézo-électrique, permettant des balayages latéraux jusqu'à 100µm.

#### ► Détermination des caractéristiques chimiques des échantillons

La spectroscopie d'électrons Auger nous a permis l'étude in-situ des caractéristiques chimiques des échantillons. Cette technique sensible à la surface (5 à 20Å) permet la caractérisation fine de la composition chimique en surface des échantillons. Elle a servi principalement pour contrôler la pureté des dépôts vis à vis d'une éventuelle pollution de carbone ou d'oxygène.

## 1.5 La couche tampon de Mo(110)

Il existe deux méthodes pour préparer une surface propre de Molybdène. La première consiste à utiliser un monocristal massif poli selon la surface souhaitée. Le monocristal, une fois introduit dans la chambre de dépôt, doit subir des bombardements ioniques et des recuits thermiques de façon à aplanir sa surface, et également des recuits sous O<sub>2</sub> et des recuits flash pour le nettoyer des impuretés piégées dans le massif. Du fait du prix élevé et du temps non négligeable de préparation d'un monocristal de métal réfractaire, ce dernier est réutilisé à chaque expérience : après les caractérisations in-situ de l'échantillon, la surface est décapée et re-préparée in-situ par bombardements ioniques et traitements thermiques successifs.

L'autre méthode, plus versatile, est l'épitaxie d'une couche tampon de Mo sur un substrat monocristallin comme le saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Cette méthode a un coût moins élevé et est plus adaptée à des caractérisations ex-situ. C'est cette méthode qui a été retenue au laboratoire. La couche tampon de Mo(110) est obtenue par dépôt laser pulsé sur un substrat de saphir  $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ . Sa croissance a été optimisée par RHEED et AFM au laboratoire [Fruchart98a, Fruchart98d]. La méthode optimale retenue consiste à débiter le dépôt à température ambiante pour favoriser le mouillage du saphir puis de monter progressivement à 500K pour favoriser l'épitaxie. Un recuit au dessus de 1000K permet l'aplanissement de la surface et une recristallisation complète de la couche qui élimine les contraintes, la faible mosaïcité résiduelle, et fait disparaître les domaines de relation d'épitaxie minoritaire correspondant à ( $\text{Al}_2\text{O}_3[0001]//\text{Mo}[1\bar{1}\bar{1}]$ ), au profit de la relation d'épitaxie majoritaire ( $\text{Al}_2\text{O}_3[0001]//\text{Mo}[1\bar{1}1]$ ). La reprise de la croissance à haute température peut améliorer au besoin la régularité des marches atomiques. Nous obtenons ainsi des surfaces de molybdène de très grande qualité et nous avons confirmé les résultats de l'étude précédente par des observations STM in-situ. Sur la Figure 1.10, on peut voir la morphologie de la couche tampon après le dépôt à 500K (encart) et la surface de Mo(110) obtenue en suivant la méthode décrite ci-dessus après le recuit à  $\simeq 1100\text{K}$ . La surface est alors constituée de marches atomiques parallèles et régulièrement espacées. Ce réseau de marches est induit par la légère désorientation du substrat de saphir par rapport au plan ( $11\bar{2}0$ ). Nous avons mis en évidence que les substrats de 2 pouces fournis par Union Carbide possèdent une vicinalité constante inférieure à  $0.05^\circ$ , ce qui correspond à des terrasses de largeur moyenne 200nm. Les éléments de  $9\text{mm} \times 7\text{mm}$  découpés dans le substrat de 2 pouces et utilisés pour les dépôts, ont été répertoriés en fonction de l'orientation des marches et la dimension des terrasses, déterminées par STM sur un seul élément.

Nous avons également observé sur des couches tampons de faible épaisseur (taux de couverture de 5nm) subissant un recuit à température élevée ( $T_{\text{rec}} > 1100\text{K}$  avec les nouveaux porte échantillons), l'apparition de trous dont la profondeur correspond à l'épaisseur totale du film. Comme on peut le constater sur la Figure 1.11, ces trous ont une forme très régulière et sont allongés parallèlement à la direction cristallographique Mo[001]. Cette instabilité peut être évitée en augmentant l'épaisseur nominale avant recuit de la couche tampon et en limitant le recuit à 1100K.

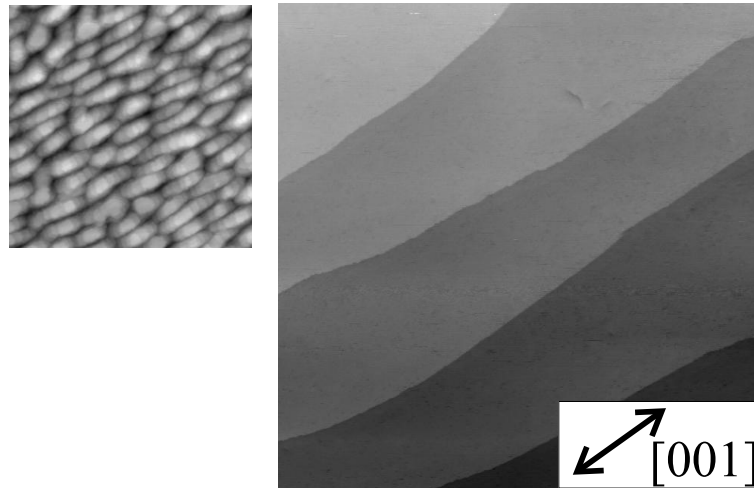


FIG. 1.10 – Image STM  $500\text{nm} \times 500\text{nm}$  de la couche tampon de  $\text{Mo}(110)/\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$  obtenue en suivant la méthode optimisée décrite dans le texte et dans [Fruchart98d]. Encart,  $100\text{nm} \times 100\text{nm}$  de la couche tampon avant le recuit à  $1100\text{K}$ .

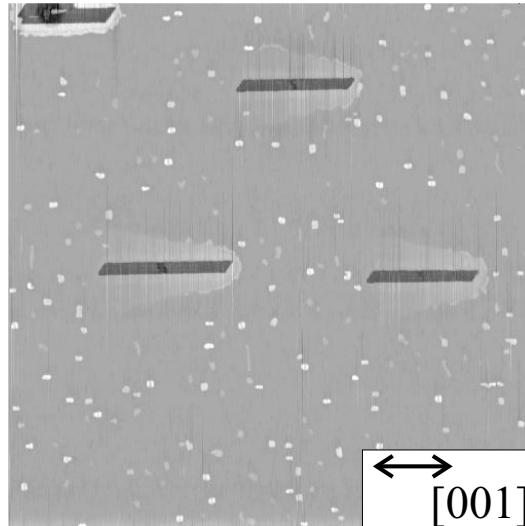


FIG. 1.11 – Image AFM  $10^4\text{nm} \times 10^4\text{nm}$  de  $\Theta = 5\text{nm}$  de Mo déposé sur  $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$  à  $500\text{K}$  et recuit à  $T_s > 1100\text{K}$ . Les tranchées font  $\simeq 5\text{nm}$  de profondeur et sont alignées parallèlement à  $[001]$ . Entre les tranchées, la couche est atomiquement plane comme observée par STM. Les îlots que l'on voit sur cette image correspondent à un dépôt de Fe de  $\Theta \simeq 0.3\text{nm}$  sur la couche tampon de Mo.



## Chapitre 2

# La croissance de Fe/Mo(110) proche de l'équilibre thermodynamique : vers des îlots compacts auto-assemblés

### 2.1 Croissance Fe/Mo(110) dans le régime sub-monocouche

Dans cette section nous nous intéressons aux premiers stades de la croissance de Fe/Mo(110), et plus précisément au régime sub-monocouche. Bien qu'imposée par des considérations thermodynamiques la formation du premier plan atomique est guidée par la cinétique à travers les processus de nucléation et expansion des îlots. Elle se présente de plus comme un cas simple pour lequel il est possible d'appliquer les modèles de cinétique pour déterminer les énergies et longueurs caractéristiques de la diffusion de Fe sur Mo(110). L'étude de la cinétique de la croissance sub-monocouche peut s'avérer aussi une méthode intéressante pour la comparaison des différentes techniques de dépôt par évaporation.

#### 2.1.1 Croissance sub-monocouche de Fe/Mo(110) par DLP

La Figure 2.1 présente des images STM à différents stades de la croissance par DLP du premier plan atomique de Fe sur Mo(110). La couche tampon de Mo présente ici des marches atomiques parallèles à la direction [001] et régulièrement espacées de  $\approx 150\text{nm}$ . Le Fe a été déposé à 650K avec une vitesse de dépôt de  $0.5\text{\AA}/\text{min}$ . La première phase de la croissance est la nucléation, qui se termine approximativement pour  $\Theta \approx 0.1\text{MC}$ . La densité d'îlots a atteint alors son maximum,  $2 \times 10^{-3}\text{nm}^{-2}$ . On note une tendance à la décoration du bord inférieur des marches atomiques de Mo,

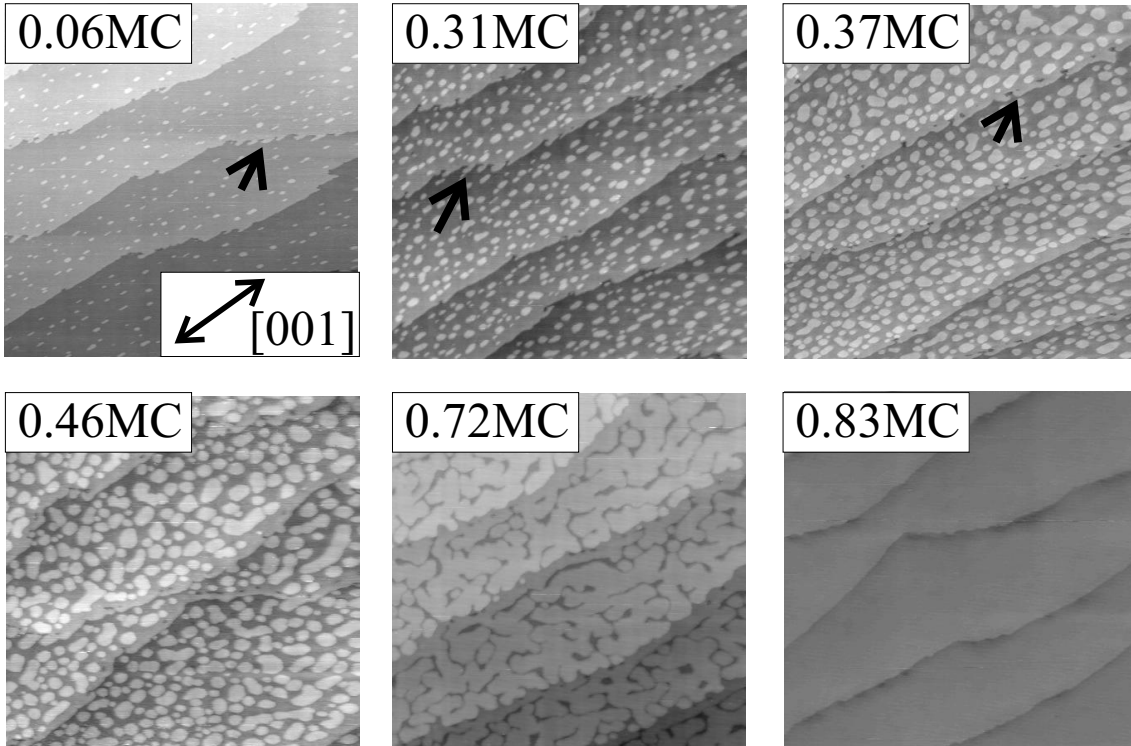


FIG. 2.1 – Images STM de 500nm x 500nm représentant la croissance de Fe sur Mo(110) dans le régime submonocouche. La température du substrat est 650K et la vitesse de dépôt 0.5Å/min. Les taux de couverture ont été déterminés à partir des images STM en calculant le volume des îlots. Sur les trois premières images, les flèches soulignent la présence de protubérances de Fe sur le bord inférieur des marches de Mo.

mise en évidence par la présence de protubérances. Ce phénomène est habituel et est dû au fait que la coordination est supérieure sur le bord inférieur de la marche. Après la nucléation, la croissance se poursuit par la croissance latérale des îlots de façon isotrope jusqu'à la coalescence pour  $\Theta \geq 0.45\text{MC}$ . L'image à  $\Theta = 0.72$  présente une configuration en labyrinthe typique d'une coalescence retardée. La formation de canaux de 1HA entre les îlots de Fe trouve une explication dans la forte différence de paramètre de maille entre Fe et Mo ( $f = -8.9\%$ ). La contrainte résiduelle peut être diminuée partiellement par des distorsions élastiques des atomes de Fe et de Mo près des bords des îlots [Massies94]. La structure en labyrinthe favorise ce processus en augmentant la longueur de bords sur lesquels peut se faire la relaxation. Nous avons vérifié par RHEED que le premier plan atomique de Fe est pseudomorphe. La complétion de la couche est obtenue pour  $\Theta \simeq 0.83\text{MC}$  permettant une bonne qualibration de la balance à quartz.

Le mode de croissance est qualitativement identique dans la gamme de tem-

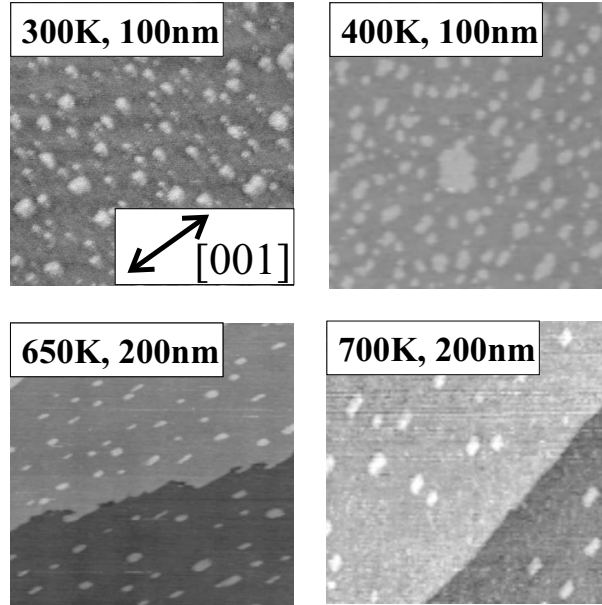


FIG. 2.2 – Images STM de dépôts de Fe sur Mo(110) pour un taux de couverture  $\Theta \simeq 0.1\text{MC}$ . Les températures de dépôt et les tailles des images sont données en encart.

pératures 300K - 700K . La Figure 2.2 montre des images STM correspondant à  $\Theta \approx 0.1\text{MC}$  pour différentes températures. La vitesse de dépôt est de  $0.5\text{\AA}/\text{min}$ . Avec l'augmentation de la température, la densité des îlots diminue et la distance entre les îlots augmente. D'origine cinétique, cet effet traduit une tendance à favoriser la croissance au détriment de la nucléation. Dans le cas d'une croissance bidimensionnelle sur une surface présentant des terrasses suffisamment larges, il est possible d'analyser ces résultats en considérant les modèles cinétiques de la croissance, ce qui est fait ci-dessous.

### 2.1.2 Étude cinétique de la nucléation

Les équations de la cinétique d'un dépôt s'obtiennent en décrivant le scénario des différents processus microscopiques intervenant lors de la nucléation et de la croissance (cf. partie 1.1.2 et [Venables73, Brune98a]). Pour parvenir à une description quantitative, les modèles nécessitent certaines hypothèses simplificatrices : on considère une croissance 2D sur une surface sans défauts, un coefficient de collage de 1 (c'est à dire pas de désorption), une diffusion isotrope. Il faut postuler une taille critique  $i$  de stabilité d'un noyau : un noyau formé d'au moins  $(i + 1)$  adatoms est stable, immobile et ne peut que croître. Par contre, un noyau de taille  $(1 < x_1 \leq i)$  atomes peut, si  $x_1 \neq 1$ , se décomposer en noyaux de taille inférieure ou participer lors de la rencontre d'un autre noyau de taille  $x_2$  aux processus de nucléation (si

$i + 1 - x_1 \leq x_2 < i + 1$ ), ou de croissance si  $x_2 \geq i + 1$ . Dans le cas le plus simple où  $i = 1$ , on a seulement besoin de considérer les processus (1) d'adsorption d'atomes de la phase gazeuse avec une vitesse  $F$  (en atomes/site atomique.sec), (2) de diffusion des adatoms caractérisée par une vitesse  $D = D_0 \times \exp(-E_d/(k_B T))$  (en site/sec) avec  $E_d$  l'énergie d'activation de diffusion, (3) la formation d'un dimère à partir de deux adatoms et (4) l'incorporation d'un adatome par un noyau stable de taille  $x_2 \geq i + 1$ . Lorsque la taille du noyau critique  $i$  est supérieure à 1, il faut faire intervenir l'énergie de liaison de l'îlot  $E_i$  ( $E_1 = 0$ ), mais aussi en toute rigueur les vitesses de diffusion  $D_x$  des noyaux de taille  $2 < x < i$ . Il faut noter que cette dernière contribution ne modifie pas la loi d'échelle de la densité d'îlots stables  $N_x$  dans la plupart des systèmes [Brune98a]. Pour cela, il faudrait que la vitesse de diffusion de ces noyaux soit bien plus faible que celle correspondant à leur dissociation [Bartlet96]. A partir des équations de cinétique de diffusion, il est possible d'exprimer les quantités accessibles par l'expérience (densité d'îlots, distance entre îlots) en fonction de ces vitesses et énergies d'activation.

La densité de nucléation  $N_x$  est donnée par l'expression :

$$N_x = \eta(\Theta, i) \left( \frac{D}{F} \right)^{-\chi} \exp \left( \frac{E_i}{(i+2)k_B T} \right) = \eta(\Theta, i) \left( \frac{D_0}{F} \right)^{-\chi} \exp \left( \frac{E_i - iE_d}{(i+2)k_B T} \right) \quad (2.1)$$

avec  $\eta(\Theta, i) \simeq \Theta^{1/(i+2)}$  et le facteur d'échelle  $\chi = \frac{i}{i+2}$  [Venables73].

La cinétique est également caractérisée par une longueur caractéristique de diffusion  $\ell$ , qui correspond par exemple à la distance moyenne entre les îlots, en nombre de sites atomiques. Cette longueur peut être identifiée aussi au libre parcours moyen de diffusion d'un adatome, ou au diamètre maximum des îlots avant la coalescence. Villain et al. ont montré que  $\ell$  est relié au rapport du coefficient de diffusion avec la vitesse de dépôt [Villain92a, Villain92b]. Dans leur modèle minimal ( $i = 1$ ) et en négligeant un terme en logarithme qui est faible dans la plupart des cas, ils obtiennent la relation suivante :

$$\ell \simeq \left( \frac{D}{F} \right)^{1/6} \quad (2.2)$$

Expérimentalement, nous avons obtenu les valeurs de densité de nucléation et de distance moyenne entre îlots pour le système Fe/Mo(110) par une analyse numérique des images STM. Pour chaque température, une ou plusieurs images de dimensions allant jusqu'à 500nm×500nm ont été considérées de manière à avoir au minimum une statistique sur 70 îlots. La Figure 2.3a donne, dans une représentation d'Arrhenius, la variation de la densité d'îlots  $N_x$  en fonction de la température de dépôt. Deux régimes linéaires peuvent être distingués suivant que la température est supérieure ou inférieure à 500K. Une telle transition dans la variation de  $N_x$  a déjà été décrite pour

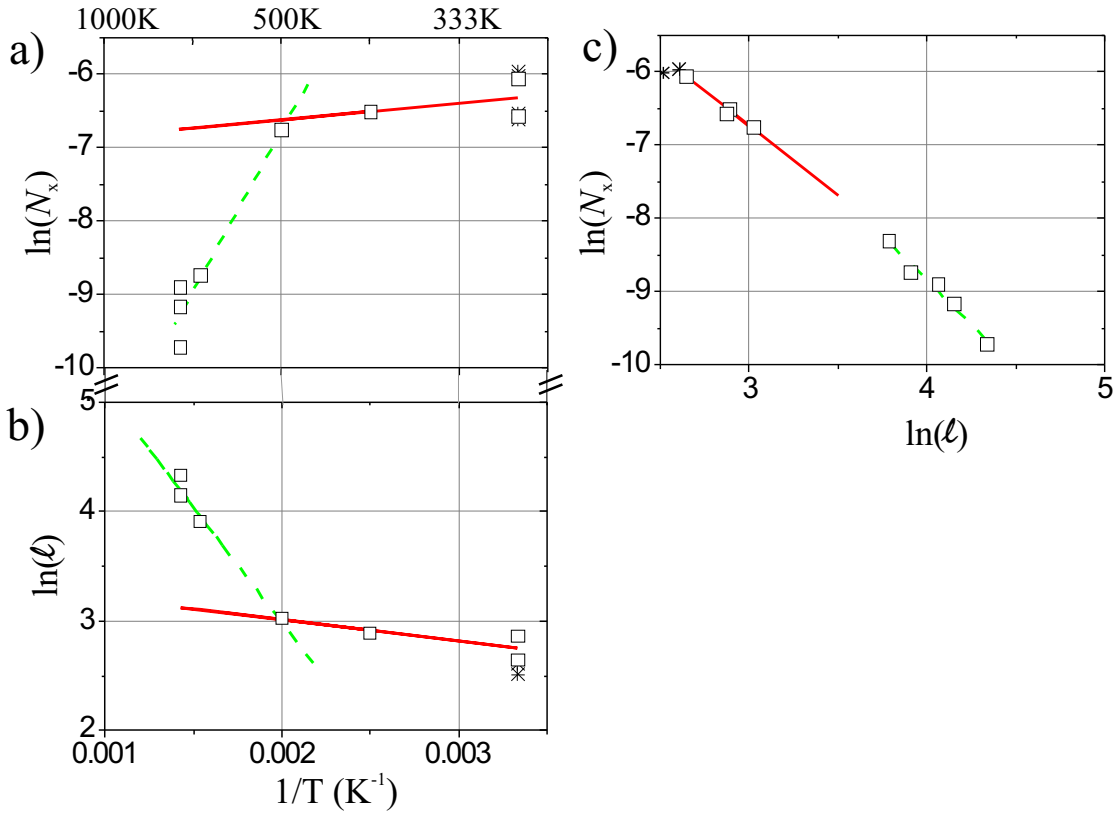


FIG. 2.3 – Données expérimentales (a) de la densité de nucléation  $N_x$  et (b) de la distance moyenne entre îlots  $\ell$  en fonction de l'inverse de la température (représentations d'Arrhenius). Les droites correspondent aux régressions linéaires dans les deux régimes de température. Les étoiles correspondent aux données de la littérature pour les systèmes Fe/Mo(110) et Fe/W(110). (c) Évolution de  $N_x$  par rapport à  $\ell$ .

les systèmes Ag/Pt(111)[Brune99] et Fe/Fe(001)[Stroscio94]. Elle s'explique par un changement de taille critique de stabilité des noyaux. Au delà d'environ 500K, le système a suffisamment d'énergie pour que la probabilité de dissociation des noyaux de taille ( $i$ ) soit significativement non nulle, ce qui entraîne une augmentation de la taille critique de stabilité des noyaux qui devient supérieure ou égale à ( $i + 1$ ). Pour déterminer à partir des courbes expérimentales les énergies caractéristiques de diffusion, il est nécessaire de connaître la taille critique ( $i$ ). Pour des températures suffisamment basses, la nucléation est irréversible, ce qui correspond au cas le plus simple ( $i = 1$ ). Il n'est pas évident que pour un dépôt à 300K on se trouve toujours dans ce régime. Différentes méthodes ont été proposées pour tester la taille critique des îlots en fonction de la température, généralement basées sur l'analyse de la distribution de taille des îlots en fonction de la température et du taux de dépôt [Bartlet92, Amar95]. En se basant sur cette méthode, Stroscio et al. ont montré que

dans le cas du système Fe/Fe(001), les dimères sont stables jusqu'à environ 500K [Stroscio94].

Pour le système Fe/Mo(110), on fait l'hypothèse que la taille critique est également  $i = 1$  à température ambiante. Les grandeurs caractéristiques de la diffusion sont déterminées à partir de la pente et de l'ordonnée à l'origine de  $\ln(N_x)$  en fonction de  $(1/T_s)$  dans le régime basse température. On obtient ici  $E_d \simeq 0.06 \pm 0.1\text{eV}$  et très approximativement  $(\frac{D_0}{F}) \approx 10^{8 \pm 1}$ . Les barres d'erreur sont importantes du fait du nombre restreint de points expérimentaux. L'hypothèse  $i = 1$  nous permet d'utiliser d'après l'équation 2.2 la mesure des variations de  $\ell$  en fonction de la température (cf. Figure 2.3b) :

$$\ell \simeq \left(\frac{D}{F}\right)^{1/6} \simeq \left(\frac{D_0}{F}\right)^{1/6} \exp(-E_d/(6k_B T_s)) \quad (2.3)$$

Avec cette deuxième approche on trouve de manière consistante  $E_d \simeq 0.1 \pm 0.05\text{eV}$  et  $(\frac{D_0}{F}) \approx 10^8$ . Par comparaison avec les résultats de Fe/Fe(100),  $E_d \simeq 0.45 \pm 0.04\text{eV}$  [Stroscio94], il apparaît que la mobilité des adatoms de Fe est plus grande sur Mo(110) que sur Fe(001). La comparaison de nos résultats avec les résultats de la littérature pour les systèmes Fe/Mo(110) et Fe/W(110) sera faite dans la partie suivante.

Enfin, si  $i = 1$ , le facteur d'échelle  $\chi = \frac{i}{i+2}$  de l'équation (2.1) doit être égal à  $1/3$  et, en couplant les relations 2.1 et 2.2, on doit vérifier  $N_x \propto \ell^{-6\chi}$ . En exploitant les variations de  $\ln(\ell)$  en fonction de  $\ln(N_x)$  représentées sur la Figure 2.3c, on retrouve effectivement  $\chi = 0.315 \pm -0.035$ , ce qui nous permet de valider l'hypothèse ( $i = 1$ ).

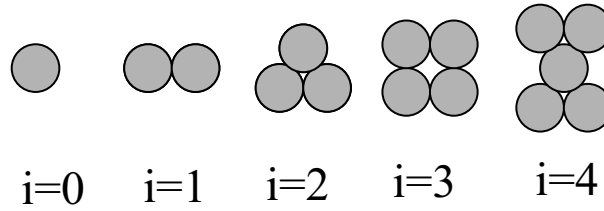


FIG. 2.4 – Diagramme représentant schématiquement les configurations stables de noyaux pour différentes tailles critiques  $i = 1$  à 4.

Dans le régime haute température ( $i \geq 2$ ), les variations de  $N_x$  avec la température doivent permettre d'exprimer l'énergie de liaison  $E_i$  pour un îlot de  $i + 1$  atomes de Fe adsorbés sur Mo. Là encore, le problème est de connaître sans ambiguïté la taille du noyau stable au delà de 500K, qui dépend de la symétrie de la surface. La Figure 2.4 présente de façon schématique les configurations de différents noyaux stables. Dans le cas d'un réseau de surface hexagonal, on s'attend à avoir ( $i = 2$ ) (exemple Ag/Pt(111)). Dans le cas d'un réseau carré, on s'attend à avoir ( $i = 3$ )

(exemple Fe/Fe(001)). Dans le cas d'un réseau rectangle centré, il ne paraît pas évident de savoir quelle sera la taille d'îlot stable entre  $i = 2, 3, 4$ . Une possibilité pour discriminer les trois valeurs est de recalculer les densités d'îlots avec l'équation 2.1 avec les valeurs  $E_d$  et  $(\frac{D_0}{F})$  obtenues dans le régime ( $i = 1$ ). La précision de  $(\frac{D_0}{F})$  n'est malheureusement pas assez bonne pour trancher dans notre étude, car pour différentes valeurs possibles de  $(\frac{D_0}{F})$  on reproduit les valeurs expérimentales de  $N_x$  avec  $i = 3$ ,  $i = 4$  ou  $i = 5$ . L'ordre de grandeur de l'énergie de liaison des îlots de taille  $i = 2, 3$  ou  $4$  est  $E_i \approx 1.5\text{eV}$ , ce qui est très comparable à l'énergie de liaison des îlots de 4 atomes de Fe ( $i = 3$ ) déterminé dans le cas du système Fe/Fe(001) [Stroscio94].

En conclusion, l'étude de la cinétique de la croissance de Fe/Mo(110) dans le régime sub-monocouche, nous a permis de déterminer approximativement les valeurs des énergies de diffusion et de liaison des atomes de Fe adsorbés sur Mo(110). Comme dans le cas de l'homoépitaxie de Fe/Fe(001), la taille critique est vraisemblablement égale à 1 jusqu'à 500K. Pour confirmer complètement cette hypothèse, il serait intéressant d'étudier la variation de distribution de taille des îlots en fonction de la température et du taux de couverture, ce qui n'a pas pu être fait ici par manque de statistique. Par ailleurs, il n'est pas évident que comme dans le cas du Fe/Fe(001) on passe du régime où ( $i = 1$ ) à ( $i = 3$ ) à 500K. L'estimation de  $(\frac{D_0}{F})$  est ici trop approximative pour conclure. Des expériences pour des températures intermédiaires entre 400K et 600K sont nécessaires pour réduire les barres d'erreur et mieux comprendre la transition à ( $i > 1$ ).

### 2.1.3 Comparaison de la croissance par DLP et par MBE

Les dépôts réalisés à 300K par DLP peuvent être comparés à ceux obtenus par MBE sur les systèmes Fe/Mo(110)[Malzbender98] et Fe/W(110)[Bethge95]. Dans le cas du dépôt sur Mo(110), les deux vitesses de dépôt testées (0.06Å/min et 0.4Å/min) donnent des résultats très différents. Pour des vitesses élevées, les auteurs observent une diminution d'un ordre de grandeur de la densité des îlots et une plus forte décoration des marches. Ces observations sont surprenantes et ne peuvent pas s'expliquer en termes de cinétique de croissance par une simple augmentation du flux de dépôt. On s'attendrait en effet à avoir à l'inverse une augmentation de la densité. Dans le cas du dépôt de Fe/W(110) la vitesse de dépôt est estimée entre 0.15 et 0.8Å/min. Nous constatons que les densités d'îlots et les tailles moyennes observées par ces auteurs (Mo, cas faible vitesse uniquement) sont très proches de nos résultats :  $N_x^{max} \simeq 1.2$  à  $2 \times 10^{-2}\text{nm}^{-2}$  et  $\ell^{min} \simeq 5\text{nm}$ . D'un point de vue cinétique, cela signifie que le rapport  $(\frac{D}{F})$  est très proche à 300K pour les deux techniques de dépôt. La spécificité de flux instantané élevé du DLP ne semble donc pas modifier significativement la densité des îlots monoatomiques de Fe sur Mo(110),

contrairement au cas Fe/Cu(111) [Jenniches96]. Comme nous l'avons déjà introduit dans le CHAP. 1, le flux d'atome pour une impulsion est de 5 ordres de grandeur supérieur au flux moyen de dépôt (MBE ou PLD). D'après l'équation 2.1, on devrait observer une densité de deux ordres de grandeur plus importante. Cette approche néglige cependant le caractère intermittent du dépôt laser pulsé. Dans l'intervalle de temps séparant deux impulsions, les adatoms ne sont pas figés mais diffusent sur la surface. Le libre parcours moyen d'un adatome n'est alors plus simplement relié à  $(\frac{D}{F})$  mais à un rapport  $(\frac{D}{F})_{eff}$  effectif qui prend en compte le temps de diffusion entre deux arrivées successives de paquets d'atomes. On peut ainsi formuler le critère suivant : lorsqu'au cours d'une impulsion, le nombre de nouveaux adatoms par aire de capture d'îlot ( $\approx \ell^2$ ), déterminée d'après l'équation 1.2 en faisant intervenir le flux moyen, est inférieur à 1, alors la probabilité de formation de nouveaux noyaux du fait du caractère pulsé est négligeable. La densité d'îlots attendue en DLP est alors similaire à celle de la MBE. On peut donc s'attendre d'une part, à une valeur seuil de vitesse de dépôt au delà de laquelle la densité d'îlots en DLP s'accroît par rapport à MBE et d'autre part, à une différence entre le DLP par rapport à la MBE mieux révélée à haute température et pour des systèmes à diffusion rapide (cf. Equation 1.2). Pour Fe/Mo(110),  $\ell^2 \approx 25\text{nm}^2$  à 300K et dans les conditions où nous travaillons, il arrive pour une impulsion laser, un atome tous les  $\approx 115\text{nm}^2$ . Le critère que nous venons d'énoncer est donc satisfait, et on attend une densité des îlots par MBE et par DLP similaire à 300K, ce qui est bien observé. Par ailleurs, dans les spécificités du DLP il faut aussi considérer que la diffusion peut être accrue par rapport à la MBE du fait du bombardement de la surface par des espèces d'énergie de 1 à 100eV. Suivant les auteurs, l'effet prépondérant est décrit comme provenant soit de l'influence de la forte vitesse instantanée [Jenniches99, Ohresser99], soit de l'influence de l'énergie des particules incidentes [Störmer95, Cheung98]. Pour étudier plus en détail les différences de cinétique de croissance par DLP et MBE il serait intéressant de comparer les variations de  $N_x$  et  $\ell$  pour différentes températures de dépôt.

Les résultats de la croissance du fer au dessus de 600K présentés par [Malzbender98, Tikhov90, Elmers94, Bethge95] mettent en évidence une croissance par flux de marche et ne peuvent donc pas être exploités pour comparer les deux techniques de dépôt. Ce changement de mode de croissance s'explique par l'influence des marches atomiques sur la croissance. Nous avons mis en évidence qu'à cette température, le libre parcours moyen des adatoms de Fe est d'environ 20nm. Cette distance est alors comparable aux largeurs des terrasses du cristal de Mo(110) et W(110) sur lesquels ont été faits les dépôts par MBE. A 600K, la température est suffisante pour qu'un adatome diffuse jusqu'en bord de marche, sur laquelle il est incorporé. Dans notre étude, la largeur des terrasses de la surface de Mo(110) est de l'ordre

de 150 à 200nm. A 600K, le mode de croissance n'est donc pas perturbé par les marches. Nous observons néanmoins une tendance à décorer le bord inférieur des marches. Ces sites se présentent en effet comme sites favorables pour la nucléation car ils permettent de satisfaire une liaison supplémentaire. Pour un dépôt au dessus de 800K, l'influence des marches devient notable et nous observons également la croissance du premier plan atomique de fer principalement par flux de marche.

Dans cette section, nous avons appliqué les lois d'échelle de la cinétique de la croissance pour caractériser la diffusion des atomes de Fe sur une surface de Mo(110), et nous en avons extrait une estimation de la barrière d'énergie de diffusion  $E_d \simeq 0.1 \pm 0.1\text{eV}$ . Comme nous le verrons par la suite, pour des températures suffisamment basses, la croissance de Fe continue couche par couche, mais la densité d'îlots du deuxième plan atomique est plus faible, indiquant une diffusion plus rapide de Fe. Il serait alors intéressant d'appliquer le même type d'analyse pour quantifier cet effet et déterminer en particulier l'influence des contraintes. Des études précédentes ont en effet montré que la nucléation et la cinétique de croissance pour des systèmes hétéroépitaxiés doivent être fortement dominées par des effets de contraintes [Brune95].

## 2.2 Nucléation d'îlots biseautés de 1nm de haut

La croissance de Fe/Mo(110) débute, indépendamment de la température de dépôt, par la complétion du premier plan atomique. Par contre, pour la suite de la croissance, il faut distinguer deux régimes de température dont la limite se situe autour de 550K. Les résultats obtenus sur les dépôts à température modérée seront présentés dans le chapitre suivant (CHAP. 3). Nous allons décrire dans la suite de ce chapitre la croissance de Fe/Mo(110) dans le régime haute température,  $T_s > 550\text{K}$ .

### 2.2.1 Description de la croissance pour $\Theta > 1$

A haute température, la croissance de Fe/Mo(110) est de type Stranski-Krastanov c'est à dire qu'après la complétion du premier plan atomique, il se forme des îlots tridimensionnels sans résorption de la couche de mouillage, comme le montrent les images STM de la Figure 2.5 pour une croissance à 650K. Les fortes contraintes élastiques liées au désaccord paramétrique de Fe et Mo sont progressivement réduites par l'introduction de dislocations [Malzbender98, Tikhov90]. Les îlots présentent un sommet plat constitué d'une facette de type (110) dépourvue de marche atomique. De ce fait, lorsqu'ils s'étendent au travers de marches atomiques, les îlots ont une forme biseautée. Ces mêmes structures ont également été observées par STM lors

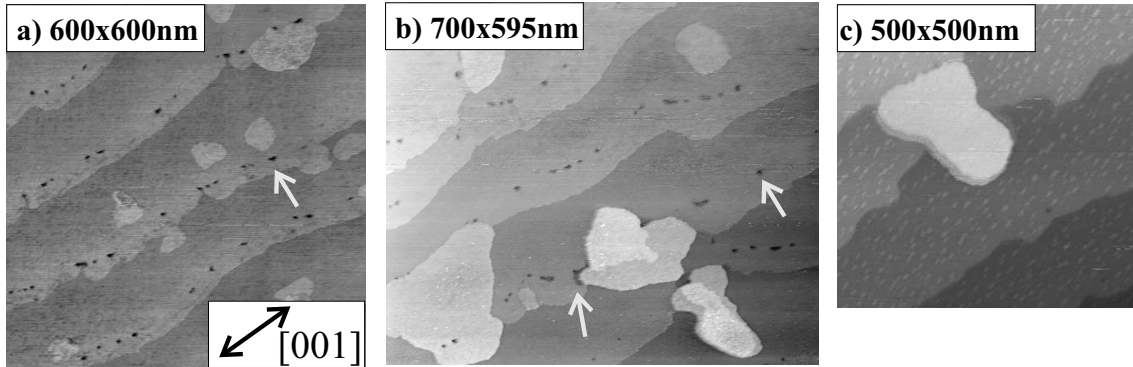


FIG. 2.5 – Images STM présentant la croissance de Fe à (650K, 0.5Å/min), après la complétion du premier plan atomique, pour  $\Theta \approx 1.1\text{MC}$  (a),  $\Theta \approx 1.4\text{MC}$  (b). (c) Image STM d'un îlot biseauté dont la hauteur est ajustée au dessus de la couche de mouillage de 2HA à 3HA au passage d'une marche atomique et présente ainsi un sommet plat.

de dépôts de Fe par MBE sur Mo(110) [Malzbender98] et W(110) [Bethge95]. La Figure 2.5-c donne un exemple de ce type d'îlots de 2 et 3HA de haut (la hauteur des îlots sera toujours comptée au dessus de la couche de mouillage, l'épaisseur locale est ici de 3 et 4HA). A partir d'observations sur des surfaces plus grandes, il apparaît que ces îlots ne présentent pas de direction préférentielle de croissance.

Autour des îlots, la surface de Mo est complètement recouverte par environ 1.1MC de Fe. Sur l'image STM des Figures 2.5a-b, on observe des défauts de remplissage dans la couche continue, alignés parallèlement aux marches et matérialisés par des trous de 1HA. L'origine des trous est incertaine. Des effets élastiques ou de raccordement de réseau de dislocation pourraient être invoqués. Le premier plan atomique étant très stable et présentant des marches régulières (cf. Figure 2.1f), nous interprétons cette observation par la formation d'un deuxième plan atomique au delà des marches de la couche tampon de Mo. Les défauts nous permettent de retrouver la position des marches du Mo et d'estimer une largeur de cette bande de 2HA à environ 40nm. La persistance d'une croissance bidimensionnelle le long des marches s'explique par une nucléation favorisée sur ces sites. Bethge et al. constatent de la même façon qu'entre les îlots biseautés, le substrat de W est recouvert d'une couche continue de Fe de 1.3MC correspondant à la poursuite de la croissance 2D sur le bord des marches [Bethge95]. La différence de taux de recouvrement peut provenir de la densité de marches plus importante pour leur substrat de W (de 10 à 100nm) ou de la nature différente du substrat.

Des observations sur de plus larges zones ont été réalisées ex-situ par AFM. La Figure 2.6a montre ainsi le résultat d'un dépôt à 650K pour  $\Theta \simeq 0.35\text{nm}$ . On

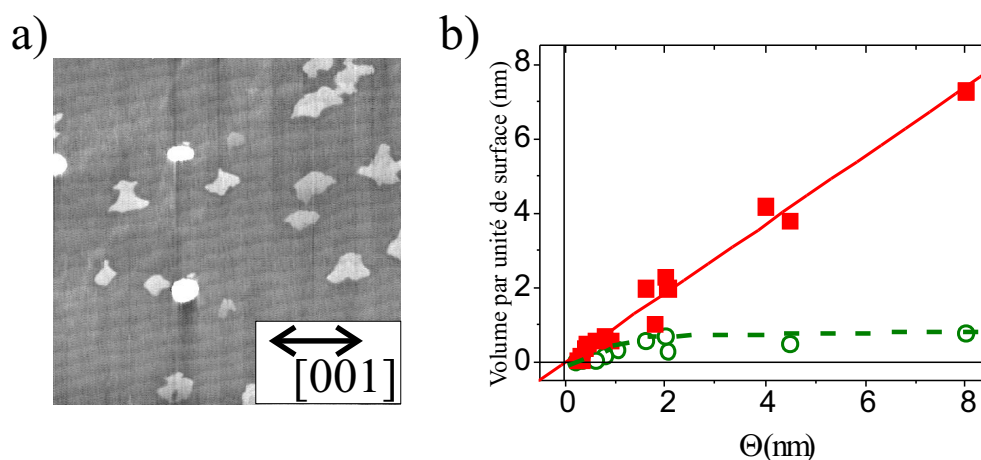


FIG. 2.6 – (a) Image AFM 4000nm  $\times$  4000nm de Fe/Mo(110) ( $\Theta = 0.35$ nm,  $T_s = 700$ K). La direction des marches atomiques (hauteur 2Å, visibles sur la figure) est proche de la direction [001]. (b) Quantité de matière par unité de surface des îlots compacts (■) et des îlots biseautés de  $\approx 1$ nm de haut (○). Les volumes ont été estimés à partir des images AFM et ne tiennent pas compte de possibles effets de pointe

retrouve les marches atomiques de la couche continue de Fe et les îlots biseautés. On met de plus en évidence l'existence d'une deuxième catégorie d'îlots. Alors que les îlots biseautés sont plats avec une hauteur moyenne de 1nm, la deuxième catégorie d'îlots a une forme compacte avec des dimensions de l'ordre de  $L \simeq 275$ nm,  $w \simeq 250$ nm,  $h \simeq 35$ nm. La densité des îlots compacts est également bien plus faible :  $\simeq 0.25 \times 10^{-6}$ nm $^{-2}$  au lieu de  $\simeq 1.5 \times 10^{-6}$ nm $^{-2}$ . Pour ce taux de couverture, le volume correspondant aux deux catégories d'îlots est similaire. Par contre, la poursuite du dépôt montre une croissance des îlots compacts 5 fois plus rapide en volume par rapport aux îlots biseautés comme le montre la Figure 2.6b. La croissance d'îlots compacts est donc vraisemblablement plus favorable d'un point de vue énergétique. L'étude de leur croissance sera développée dans la section suivante (section 2.3). Nous allons pour l'instant nous intéresser à la croissance des îlots biseautés en fonction du taux de couverture et de la température de dépôt.

## 2.2.2 Évolution des îlots biseautés avec $\Theta$ et $T_s$

La Figure 2.7a-b présente les variations de la densité  $d_{biseaux}$  des îlots biseautés, de leur surface moyenne  $\bar{S}_{biseaux}$  et du pourcentage de surface qu'ils recouvrent  $S\%_{biseaux}$ , en fonction du taux de couverture  $\Theta$  pour une température de dépôt de 700K. La hauteur moyenne des îlots biseautés est constante et proche de 1nm. La croissance des îlots se fait donc par expansion latérale. La quantité  $S\%_{biseaux}$

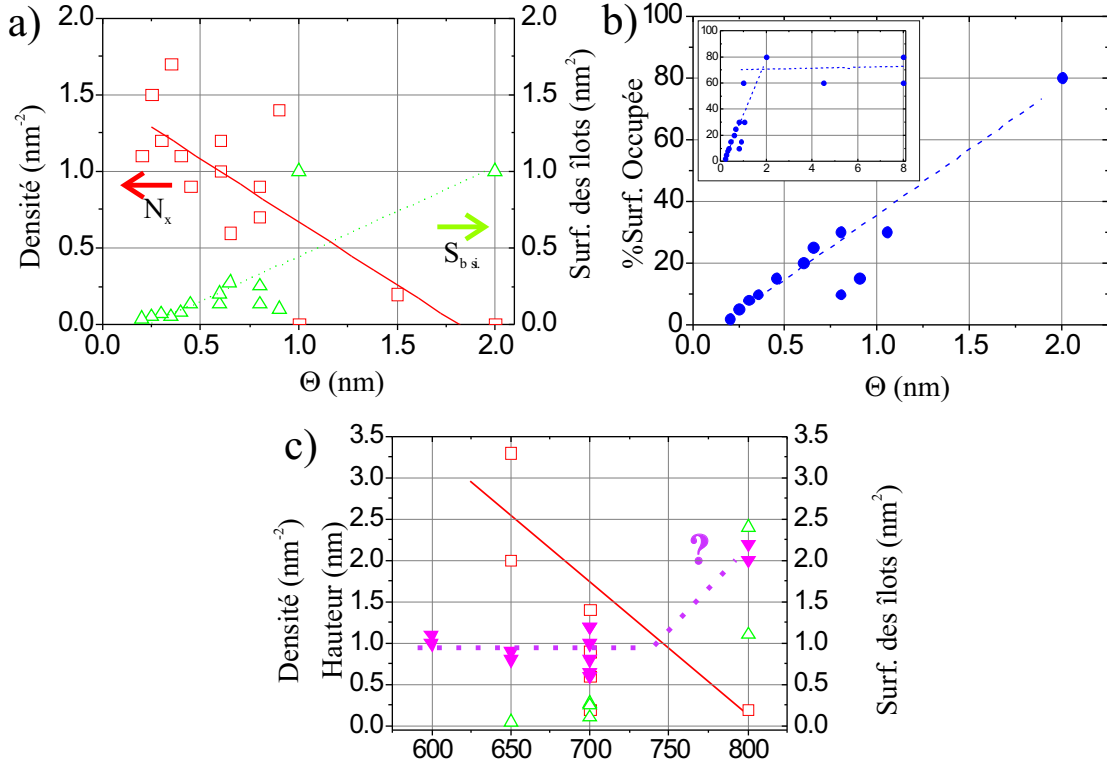


FIG. 2.7 – (a) Variation de  $d_{biseaux}$  ( $\square$ ),  $\bar{S}_{biseaux}$  ( $\triangle$ ) et (b) variation de  $S^{\%}_{biseaux}$  ( $\bullet$ ) en fonction de  $\Theta$  pour  $T_s = 700K$ .  $N_x$ ,  $\bar{S}_{biseaux}$  ne sont pas pertinents au delà de 2nm car les îlots biseautés coalescent. (c) Variation des mêmes quantités et de la hauteur ( $\nabla$ ) des îlots biseautés en fonction de  $T_s$  pour  $\Theta \approx 1$ nm.

est finalement représentative du volume de matière incorporé dans ces îlots. Pour  $S^{\%}_{biseaux} \approx 40\%$  les îlots coalescent pour former une couche discontinue de Fe( $\approx 1$ nm)/Fe(1MC)/Mo(110). La proportion de surface occupée par cette structure peut atteindre 60 à 80% pour des taux de couverture supérieurs à 2nm. Cependant, il semble qu'à partir de la coalescence, la croissance de ce type de structure est ralentie au profit de la croissance des îlots compacts (cf. encart de la Figure 2.7b).

La Figure 2.7-c présente les variations de hauteur, densité et surface des îlots biseautés pour différentes températures de dépôt et un taux de couverture proche de 1nm. L'évolution de la densité et de la taille des îlots en fonction de la température est caractéristique d'une nucléation et d'une croissance déterminées par la cinétique. Comme pour la croissance dans le régime sub-monocouche, les dimensions des îlots et leur séparation sont reliées au libre parcours moyen des adatoms qui diffusent sur la couche de mouillage de Fe. L'augmentation de la température du substrat entraîne donc une diminution de la densité et une augmentation de la surface des îlots. La densité est définie dès les premiers stades de dépôt sur la couche de mouillage et

varie au cours du dépôt du fait de la coalescence des îlots biseautés. Par ailleurs, leur hauteur reste proche de 1nm pour  $T_s = 600K$  à  $700K$ .

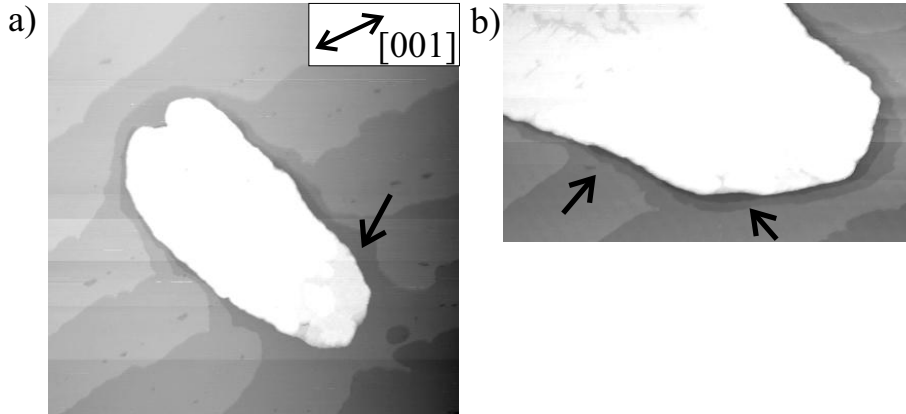


FIG. 2.8 – Images STM d'îlots biseautés (a) ( $550\text{nm} \times 550\text{nm}$ ) et (b) ( $550\text{nm} \times 320\text{nm}$ ) sur un autre îlot.

A  $800K$ , on observe une nouvelle hauteur de stabilité proche de  $2\text{nm}$ . L'analyse des îlots correspondants par STM (Figure 2.8) montre que cette augmentation de température est associée à la déplétion de la couche continue autour de l'îlot sur 1 à 3 plans atomiques. Nous avons vérifié par STM et à partir de la calibration du taux de couverture qu'il ne se forme à cette température qu'un plan atomique de mouillage suivi d'une croissance d'îlots tridimensionnels. Par conséquent, sur les bords de l'îlot, on observe le creusement d'une part du plan atomique de mouillage mais aussi de la couche tampon de Mo. Ces observations peuvent être mises en parallèle des observations de Tikhov et Bauer qui observent lors d'un recuit à  $820K$ , de fortes modifications structurales (LEED) et chimiques (AES et TDS) qu'ils attribuent à la formation d'un alliage à l'interface de Fe et Mo [Tikhov90]. Nous mettons en évidence que ces transformations se font principalement au niveau des îlots tridimensionnels, là où les contraintes sont les plus importantes. Il faut noter qu'indépendamment de ces transformations, les caractéristiques morphologiques des îlots compacts qui se forment également n'offrent pas de modifications structurales et chimiques à l'interface.

Pour conclure, la formation en parallèle d'îlots compacts semble n'avoir pas ou peu d'influence sur la croissance de ces structures de  $\approx 1\text{nm}$  de haut. Nous discuterons de l'origine de la croissance simultanée de ces deux catégories d'îlots dans la section 2.6, après la présentation de la croissance des îlots compacts.

## 2.3 Croissance d'îlots compacts auto-assemblés

En plus de la formation d'îlots plats biseautés de hauteur  $\approx 1\text{nm}$  dont nous venons de présenter les caractéristiques et le mode de croissance, la Figure 2.6 met en évidence la croissance simultanée d'îlots compacts 3D. Ces structures ont été observées à partir d'un taux de couverture de  $\Theta \simeq 0.3\text{nm}$  avec une densité  $N_x \simeq 0.1 \times 10^{-6}\text{nm}^{-2}$  pour  $T_s = 700\text{K}$ . La poursuite du dépôt voit le développement plus rapide des îlots 3D, par rapport à celui des îlots biseautés. Dans cette section, nous allons décrire dans un premier temps la morphologie et la structure des îlots compacts. Nous étudierons ensuite leur croissance en fonction des différents paramètres de dépôt.

### 2.3.1 Morphologie et structure des îlots compacts

Quelque soit le taux de couverture (pour  $\Theta > 1.5\text{MC} \simeq 0.3\text{nm}$ , le résultat de la croissance de Fe/Mo(110) à haute température  $600\text{K} < T_s < 700\text{K}$  est qualitativement le même. Sur le plan pseudomorphe de Fe se forme une assemblée d'îlots compacts entre lesquels coexistent des îlots plats de  $1\text{nm}$  d'épaisseur. La Figure 2.9a montre une image AFM d'une telle assemblée d'îlots obtenue à  $700\text{K}$  pour un taux de couverture de  $8\text{nm}$ . Les îlots, légèrement allongés, sont distribués de manière aléatoire sur la surface mais ils sont tous orientés dans la même direction cristallographique Fe[001]//Mo[001]. L'écart type moyen ( $\sigma$ ) de l'orientation des îlots avec cette direction [001] est seulement de  $3^\circ$ , dans la marge d'erreur liée à la pixelisation de l'image. Il faut noter que la direction de l'allongement des îlots compacts est indépendante de l'orientation des marches atomiques de la surface de Mo(110) pour  $T_s > 600\text{K}$ . La taille des îlots est caractérisée par leur longueur à la base  $L$ , leur largeur à la base  $w$ , et leur hauteur  $h$ .  $\bar{L}$ ,  $\bar{w}$ , et  $\bar{h}$  représentent les valeurs moyennes mesurées sur une assemblée d'îlots. La distribution de taille des îlots est relativement étroite comme le montre la Figure 2.9b. Pour décrire la morphologie des îlots, on définit également les rapports d'aspect latéral  $r = L/w$  et vertical  $\eta = h/w$ . Pour les îlots présentés sur l'image de la Figure 2.9,  $\bar{r} = 1.9(\sigma = 0.4)$  et  $\bar{\eta} = 0.3(\sigma = 0.05)$ .

La Figure 2.10 montre une image AFM et des coupes d'un îlot compact typique obtenu par croissance à haute température. Les îlots présentent une forme très régulière délimitée par des facettes. Les coupes réalisées perpendiculairement aux côtés de l'îlot, parallèlement à  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$  (section a) et  $\langle 1\bar{1}2 \rangle$  (section b), révèlent des angles de  $45^\circ$  et  $60^\circ$  avec le plan (110) du film. Les facettes déterminées à partir de ces coupes correspondent à des plans cristallographiques  $\{010\}$  et  $\{011\}$  du fer bcc. La coupe le long de la direction [001] (section c) montre que l'arête sur la pointe de l'îlot est inclinée de  $54^\circ$  par rapport au plan (110) ce qui correspond à une rangée d'atomes  $\langle 111 \rangle$ .

La configuration en facettes des îlots observée à l'AFM est confirmée par dif-

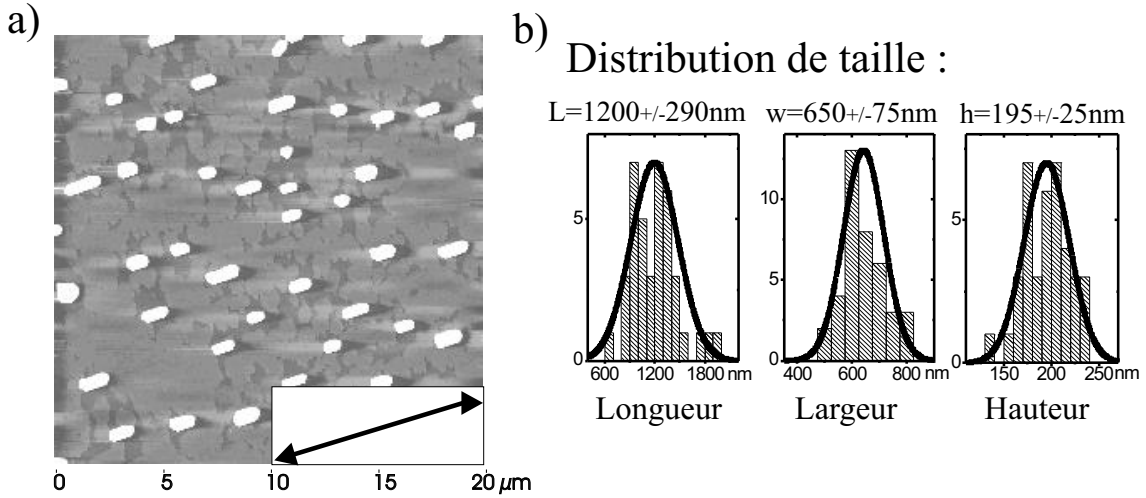


FIG. 2.9 – Image AFM d’une assemblée d’îlots de Fe épitaxiés sur Mo(110) obtenus à 700K pour  $\Theta = 8\text{nm}$  (a) et distributions de la longueur  $L$ , la largeur  $w$  et la hauteur  $h$  des îlots obtenus par analyse statistique de l’image AFM.

fraction in-situ d’électrons en incidence rasante. La Figure 2.11 montre des clichés RHEED typiques obtenus pour les azimuts  $[001]$ ,  $[1\bar{1}0]$  et  $[1\bar{1}1]$ . Les raies de diffraction qui apparaissent sur ces clichés peuvent être classés en trois différentes catégories. La première correspond aux lignes perpendiculaires à la surface moyenne de l’échantillon (lignes horizontales) associées au paramètre de maille de Mo. Ces raies correspondent à la diffraction des électrons sur la couche pseudomorphe de Fe entre les îlots compacts et biseautés. Elles ne sont visibles que sur la Figure 2.11a car la hauteur importante des îlots doit empêcher le faisceau d’électrons en incidence rasante de sonder la surface entre les îlots lorsqu’il n’est pas parallèle à la grande longueur des îlots. La deuxième catégorie de raies de diffraction est également perpendiculaire à la surface de l’échantillon et correspond aux paramètres de maille du fer massif. Ces lignes sont couramment observées dans le cas de films de Fe épitaxiés (110) et sont attribuées ici à la diffraction sur les sommets des îlots et sur les îlots biseautés présents entre les îlots compacts. Les relations d’épitaxie avec le Mo(110) sont les relations habituelles :  $\text{Fe}[001]//\text{Mo}[001]$  and  $\text{Fe}[1\bar{1}0]//\text{Mo}[1\bar{1}0]$  [Tikhov90, Fruchart99a]. La troisième catégorie de pics de diffraction consiste en des lignes inclinées d’un angle  $\pm\theta$  par rapport aux autres raies. Ces pics proviennent de la diffraction des électrons sur des plans cristallographiques de surface inclinés par rapport au plan (110). Nous avons indexé ces plans en utilisant les indices du fer massif (cf. annexe B dans [Fruchart98a]). Selon l’azimut  $[001]$  l’angle d’inclinaison est de  $\pm 45^\circ$ , révélant la présence de facettes  $\{010\}$ . La long de l’azimut  $[1\bar{1}0]$ , les raies inclinées se réduisent à une petite flèche. Malgré la faible longueur des lignes, on peut définir un angle de  $54^\circ$  qui correspond à des plans  $\{112\}$ . Le long de l’azimut

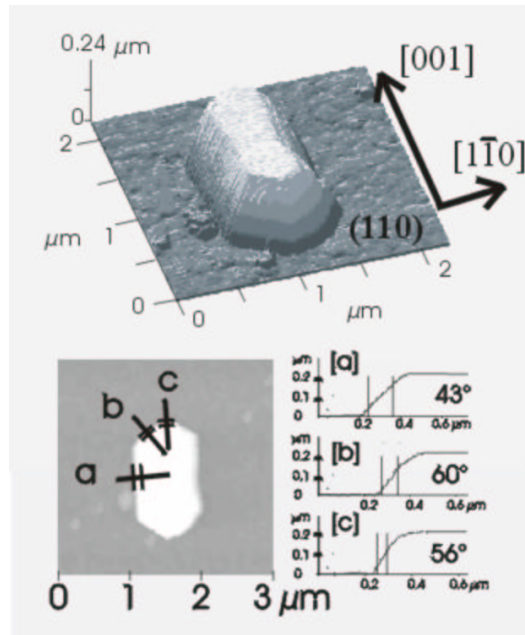


FIG. 2.10 – Image AFM d'un îlot typique obtenu à 800K pour  $\Theta = 8\text{nm}$ . Les trois sections perpendiculaires aux facettes ( $\parallel[1\bar{1}0]$  (a) et  $[1\bar{1}2]$  (b)) et le long de l'arête à la pointe de l'îlot (c), sont inclinées de  $43^\circ$ ,  $60^\circ$  et  $56^\circ$  respectivement ce qui correspond aux plans cristallographiques  $\{010\}$ ,  $\{101\}$  et à une rangée  $\langle 111 \rangle$  du fer bcc. (angles théoriques :  $45^\circ$ ,  $60^\circ$  et  $55^\circ$ )

$[1\bar{1}1]$ , on observe deux types de raies inclinées de  $30^\circ$  et  $60^\circ$ . Les plans des facettes correspondant sont  $\{121\}$  et  $\{011\}$ .

Les résultats obtenus par RHEED en sondant le réseau réciproque sont en très bon accord avec les observations AFM. De plus la finesse des lignes de diffraction associées aux facettes démontrent que les facettes des îlots sont des plans cristallographiques quasi-parfaits du fer bcc. On note cependant que parallèlement à la direction  $[001]$ , aucun plan  $\{112\}$  n'est mis en évidence par AFM alors que des raies avec cette orientation apparaissent au RHEED. Du fait que ces raies sont très faibles, deux explications peuvent être avancées. Premièrement, de telles facettes pourraient représenter une surface très limitée sur l'extrémité en pointe de l'îlot de telle façon qu'elle ne pourrait pas être vue par AFM. Ces lignes de diffraction inclinées pourraient également provenir de la diffraction de l'arête de type  $\langle 111 \rangle$  qui sépare les deux plans  $\{110\}$  de la pointe de l'îlot. En effet, les raies de diffraction RHEED sont associées à un vecteur de diffusion entre des lignes d'atomes, les lignes étant parallèles au faisceau d'électrons. Les électrons dans cette géométrie ne sont plus en incidence rasante de telle sorte que les lignes d'atomes à l'intérieur de la pointe pourraient contribuer par transmission d'électrons au signal de diffraction.

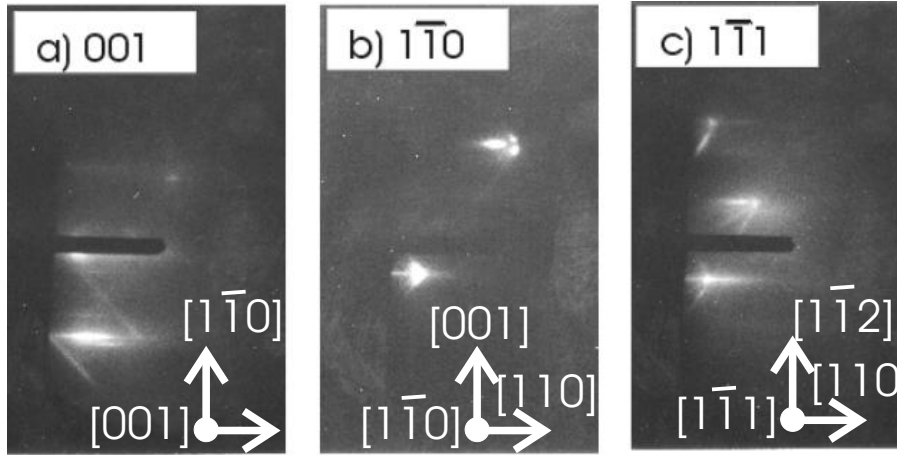


FIG. 2.11 – Clichés de diffraction RHEED sur des îlots auto-assemblés de Fe/Mo(110) obtenus à 700K pour  $\Theta = 8\text{nm}$  selon trois azimuts :  $[001]$ (a),  $[1\bar{1}0]$ (b), et  $[1\bar{1}1]$ (c). Les clichés sont décalés de quelques degrés par rapport à la direction exacte de l'azimut de manière à mettre en évidence les différentes catégories de raies.

Par ailleurs deux types de facettes sont également observées sur le cliché de diffraction RHEED pour l'azimut  $[1\bar{1}1]$ . Cela s'interprète comme la coexistence de deux différentes facettes, la plus raide  $\{011\}$  étant à la base des îlots et la plus plate  $\{121\}$  se développant près du sommet de l'îlot. L'analyse détaillée de la section (b) Figure 2.10 met en évidence une modification de pente à l'approche du sommet de l'îlot dont l'inclinaison est proche de  $30^\circ$ . Cela confirme qu'une facette de type (121) et de surface limitée se développe à l'intersection des plans (110) et (011) le long de l'axe  $[1\bar{1}1]$ . La présence de ce type de facettes n'était pas évidente à partir des seules mesures AFM car la modification de pente observée pouvait se confondre avec un lissage de l'arête entre les plans (110) à (011) lié à un effet de pointe. En conclusion, les analyses AFM et RHEED des îlots obtenus par croissance à haute température nous ont permis de caractériser finement la structure et la morphologie des îlots de Fe. La Figure 2.12 résume la forme caractéristique des îlots avec l'indexation des plans cristallographiques constituant les facettes.

### 2.3.2 Croissance des îlots en fonction de $\Theta$ et $T_s$

La présence d'îlots compacts est observée à partir de  $\Theta \simeq 0.3\text{nm}$  (Figure 2.5). Dès ce stade, la morphologie des îlots est qualitativement identique à celle présentée ci-dessus. La Figure 2.13 présente une image AFM et des clichés RHEED obtenus à 700K pour  $\Theta = 0.4\text{nm}$ . Sur les clichés de diffraction, on identifie les trois catégories de raies décrites précédemment. Pour ce taux de couverture, les raies correspondant à Fe sont faibles mais on retrouve le fait que les îlots sont terminés par des facettes

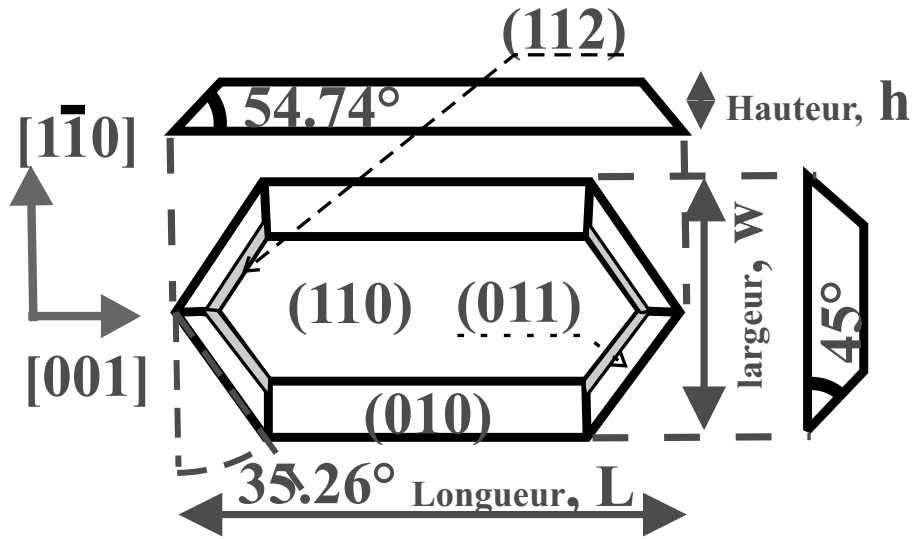


FIG. 2.12 – Schéma de la morphologie typique d'un îlot compact auto-assemblé de Fe/Mo(110), schéma obtenu à partir de l'analyse combinée des images AFM et des clichés de diffraction RHEED.

{110} et {001}. La taille réduite des nanostructures (îlots compacts et îlots biseautés) permet par ailleurs au faisceau d'électrons de sonder la couche continue entre les îlots et la catégorie des raies attribuées à la couche pseudomorphe est visible pour tous les azimuts. Pour ce taux de dépôt, les dimensions moyennes des îlots sont  $\bar{L} = 300\text{nm}$ ,  $\bar{w} = 230\text{nm}$  et  $\bar{h} = 30\text{nm}$ .

La Figure 2.14a-b présente l'évolution à 700K de  $\bar{L}$ ,  $\bar{w}$ ,  $\bar{h}$  et de  $\bar{r}$ ,  $\bar{\eta}$  en fonction du taux de couverture. La forme des îlots change rapidement dans les premiers stades de dépôt. Pour  $\Theta \simeq 0.35\text{nm}$  les dimensions moyennes sont  $275\text{nm} \times 250\text{nm} \times 35\text{nm}$ . Les rapports d'aspect alors  $\bar{r} = \bar{L}/\bar{w} \simeq 1.3$  et  $\bar{\eta} = \bar{h}/\bar{w} \simeq 0.15$  vont évoluer rapidement avec  $\Theta$  pour atteindre à  $\Theta \simeq 1.5\text{nm}$   $\bar{r} \simeq 1.8$  et  $\bar{\eta} \simeq 0.3$ . Par la suite la croissance des îlots est homothétique, c'est à dire que les dimensions évoluent de façon à conserver les rapports d'aspect constants. Pour  $\Theta \simeq 8\text{nm}$  les dimensions des îlots atteignent  $\bar{L} = 1200\text{nm} \times \bar{w} = 600\text{nm} \times \bar{h} = 190\text{nm}$ .

La forme facettée des îlots compacts et l'évolution vers des rapports d'aspect constants nous font penser à une forme d'équilibre de l'îlot de Fer. Pour confirmer cette hypothèse, la forme d'équilibre d'un cristal de Fe sera calculée et comparée aux résultats expérimentaux dans la section suivante. Par ailleurs, la valeur du rapport d'aspect latéral d'"équilibre" atteint pour  $\Theta > 1.5\text{nm}$  dépend en fait légèrement de la température de dépôt (cf. Figure 2.14d). Lorsque  $T_s$  augmente, la croissance selon la largeur et la hauteur est privilégiée par rapport à celle de la longueur (plus forte compacité) : le rapport d'aspect vertical  $\eta$  reste constant alors que le

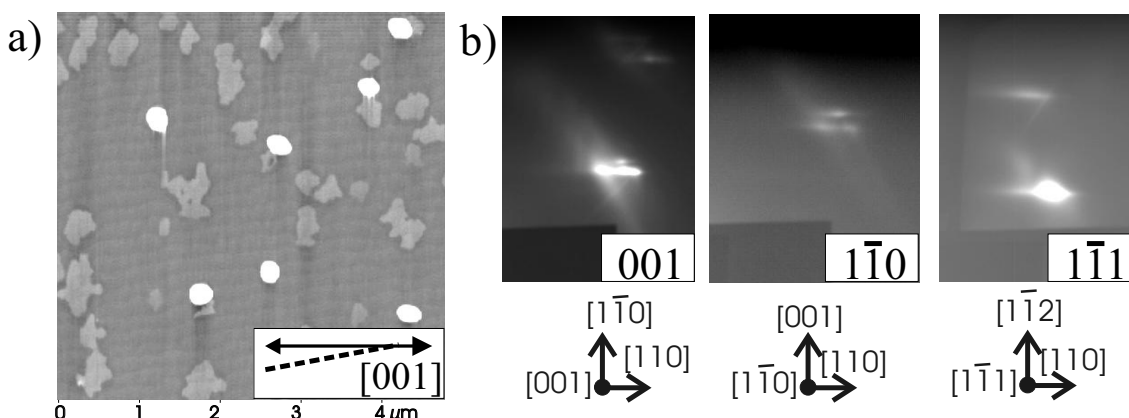


FIG. 2.13 – (a) Image AFM d’une assemblée d’îlots de Fe épitaxiés sur Mo(110) obtenus à 700K pour  $\Theta = 0.4\text{nm}$ . La direction des marches que l’on voit sur l’image AFM par rapport à la direction  $[001]$  est indiquée par le trait pointillé. Clichés RHEED obtenus sur le même échantillon avec un léger décalage en angle par rapport aux azimut  $[001]$ ,  $[1\bar{1}0]$  et  $[1\bar{1}1]$ , de façon à mettre en évidence les différentes catégories de raies.

rapport d’aspect latéral  $r$  diminue de 2 à 1.6 entre 600K et 800K. Cette évolution pourrait s’expliquer par des différences de cinétique de diffusion sur les différentes facettes et autour des arêtes. Il a en effet été montré par simulation Monte-Carlo que de tels mécanismes étaient responsables des transitions de forme des îlots avec la température du substrat, comme par exemple dans le cas du système Pt/Pt(111) qui subit trois modifications de forme entre  $T_s = 370\text{K}$  et  $T_s = 790\text{K}$  [Brune98a].

Il faut noter que la densité des îlots compacts ne varie pas avec le taux de couverture et est donc déterminée dès les premiers stades de la croissance. La Figure 2.14c montre que la densité évolue clairement avec la température de dépôt. La diminution de la densité avec  $T_s$  exclut une nucléation sur des défauts et privilégie une origine cinétique à la nucléation. Le mécanisme serait similaire à celui décrit dans le cas simple d’une croissance sub-monocouche. Le libre parcours moyen serait par contre bien plus important :  $\ell \approx 1750\text{nm}$  à 700K. Par ailleurs, nous n’avons pas observé de corrélation entre la nucléation des îlots compacts et la présence des îlots biseautés, qui semblent croître de manière indépendante. Ce point sera discuté dans la section 2.6.

## 2.4 Estimation des déformations élastiques

La structure cristalline des échantillons de Fe/Mo(110) a été étudiée par RHEED in-situ et par diffraction de rayons X ex-situ.

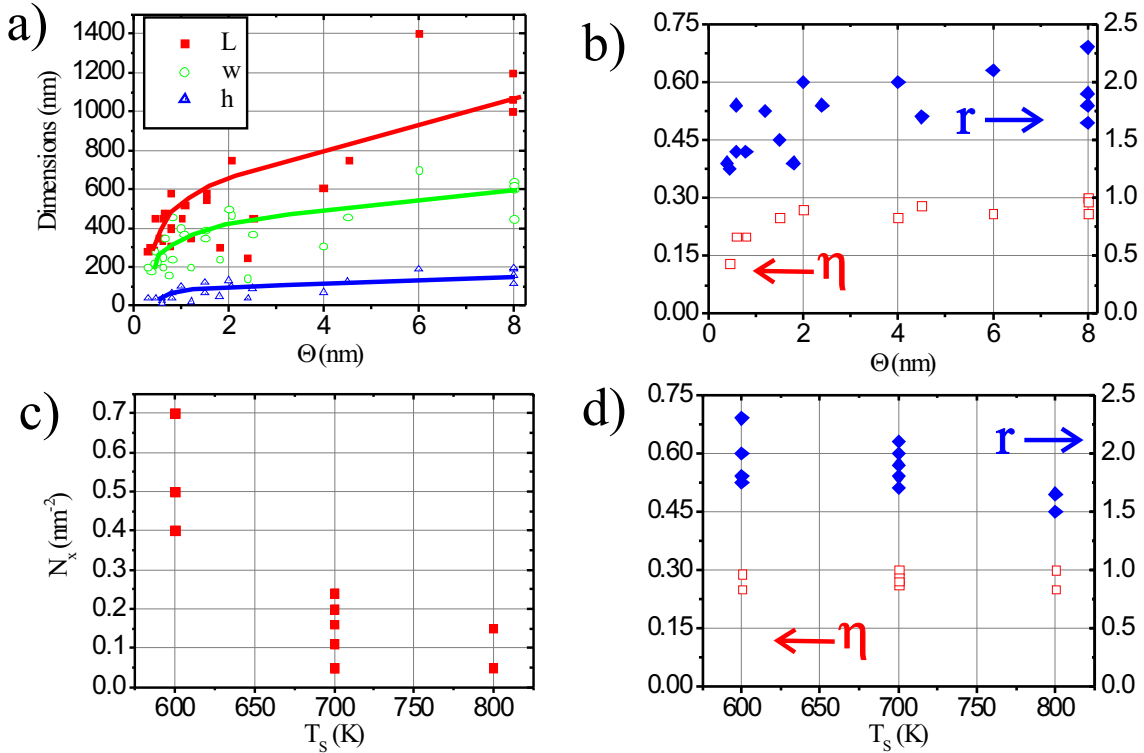


FIG. 2.14 – (a-b) Variations des dimensions, rapports d'aspect et de la densité en fonction de  $\Theta$  à  $T_s = 700\text{K}$  et (b-c) variations de la densité et des rapports d'aspect en fonction de  $T_s$  pour  $\Theta > 2\text{nm}$ , déterminées à partir de l'analyse d'images AFM.

Comme nous l'avons présenté dans la section précédente (Figures 2.11 et 2.13), les clichés de diffraction RHEED font apparaître des raies correspondant aux facettes des îlots compacts ainsi qu'aux surfaces parallèles à la surface de l'échantillon de toutes les structures : couche de mouillage, plateaux sommitaux des îlots compacts et des îlots biseautés. Nous avons pu mettre en évidence que la couche de mouillage est pseudomorphe, et que les deux types d'îlots sont relaxés dans la limite de résolution expérimentale du RHEED.

Pour caractériser de manière plus précise les déformations élastiques des échantillons, nous avons réalisé ex-situ des mesures de diffraction de rayons X. Ces expériences ont été effectuées par Luc Ortega et Annick Liénard au laboratoire de Cristallographie de Grenoble (CNRS), sur un diffractomètre quatre cercles dédié à l'analyse de texture. La source de rayons X est une anode tournante en cuivre et un monochromateur graphite permet de sélectionner les raies  $\text{Cu}K\alpha$  :  $K\alpha_1 = 1.5405\text{\AA}$ ,  $K\alpha_2 = 1.5443\text{\AA}$ ,  $\overline{K\alpha} = 1.5418\text{\AA}$ . L'échantillon étudié correspond à un dépôt à 700K de  $\Theta \simeq 1.3\text{nm}$  de Fe sur Mo(110). Les îlots compacts représentent alors un volume

par unité de surface  $V/S \simeq 0.9\text{nm}$  (épaisseur d'une couche continue de même volume) et leurs dimensions moyennes sont  $600\text{nm} \times 400\text{nm} \times 80\text{nm}$ . Les îlots biseautés ont une hauteur de l'ordre de  $1\text{nm}$  avec une surface moyenne de  $1250\text{nm} \times 1250\text{nm}$  et représentent un volume de Fe par unité de surface  $V/S \simeq 0.3\text{nm}$ . Les mesures de diffraction que nous présentons résultent donc de la superposition de spectres relatifs à ces deux catégories d'îlots. Par ailleurs, on rappelle que la couche de Fe est recouverte de  $3\text{nm}$  de Mo déposé à température ambiante comme protection contre l'oxydation.

La Figure 2.15a présente une figure de pôles (ou diagramme de texture) correspondant à la diffraction sur les plans  $\{110\}$  de Fe ( $2\theta = 44.55^\circ$ ). Cette carte en coordonnées polaires, met en évidence les angles d'incidence  $(\chi, \Phi)$  (définis sur les schémas de la Figure 2.15a) pour lesquels il existe des plans de diffraction correspondant à l'angle de Bragg  $2\theta \simeq 44.55^\circ$ . On retrouve tous les angles d'incidence des plans  $\{110\}$  d'un cristal de fer cubique centré. Les quatre pics supplémentaires observés pour  $\chi \simeq 30^\circ$  correspondent à la diffraction des rayons X sur des plans  $\{10\bar{1}3\}$  du saphir, pour lesquels l'angle de Bragg est relativement proche de celui du fer  $2\theta_{\text{Bragg}} = 43.36^\circ$ .

Les distances interréticulaires pour différents plans de Fe ont été déterminées à partir de balayages fins en  $\theta/2\theta$  pour différents angles d'incidence  $(\chi, \Phi)$  et différents angles de Bragg, pour caractériser les plans  $(110)$  et  $(101)$ ,  $(020)$  et  $(200)$ ,  $(112)$  et  $(1\bar{1}2)$  (Figure 2.15b). L'ensemble des pics de Fe ont été ajustés avec des Gaussiennes pour déterminer leur position et en déduire les déformations moyennes de la couche de Fe par rapport au fer massif. Les résultats correspondants aux différents plans  $(hkl)$  étudiés sont présentés dans le tableau 2.1.

Nous pouvons calculer les déformations résiduelles d'un cristal de Fe correspondant à ces mesures. Du fait de la symétrie de croissance du système, les directions orthogonales suivant lesquelles la maille de Fe peut se déformer indépendamment (contraction ou extension) sont  $[1\bar{1}0]$ ,  $[001]$  et  $[110]$ . Sous l'effet de ces déformations la maille cubique du fer est déformée en une maille de type monoclinique avec  $a_{100} = a_{010} \neq a_{001}$  et  $\alpha_{\widehat{010,001}} = \beta_{\widehat{001,100}} = 90^\circ \neq \gamma_{\widehat{100,010}}$ . A partir de l'expression des distances interréticulaires dans le cas monoclinique :

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{1}{\sin^2(\gamma)} \left( \frac{h^2 + k^2 - 2hk \cos(\gamma)}{a^2} + \frac{l^2 \sin^2(\gamma)}{c^2} \right) \quad (2.4)$$

on déduit les relations donnant les distances interréticulaires  $d_{001}$  et  $d_{1\bar{1}0}$  en fonction des distances interréticulaires mesurées :

$$\frac{1}{d_{001}^2} = \frac{1}{d_{101ou10\bar{1}ou01\bar{1}ou011}^2} - \frac{1}{4d_{200ou020}^2} \quad (2.5)$$

$$\frac{1}{d_{1\bar{1}0}^2} = \frac{1}{d_{200ou020}^2} - \frac{1}{d_{110}^2} \quad (2.6)$$

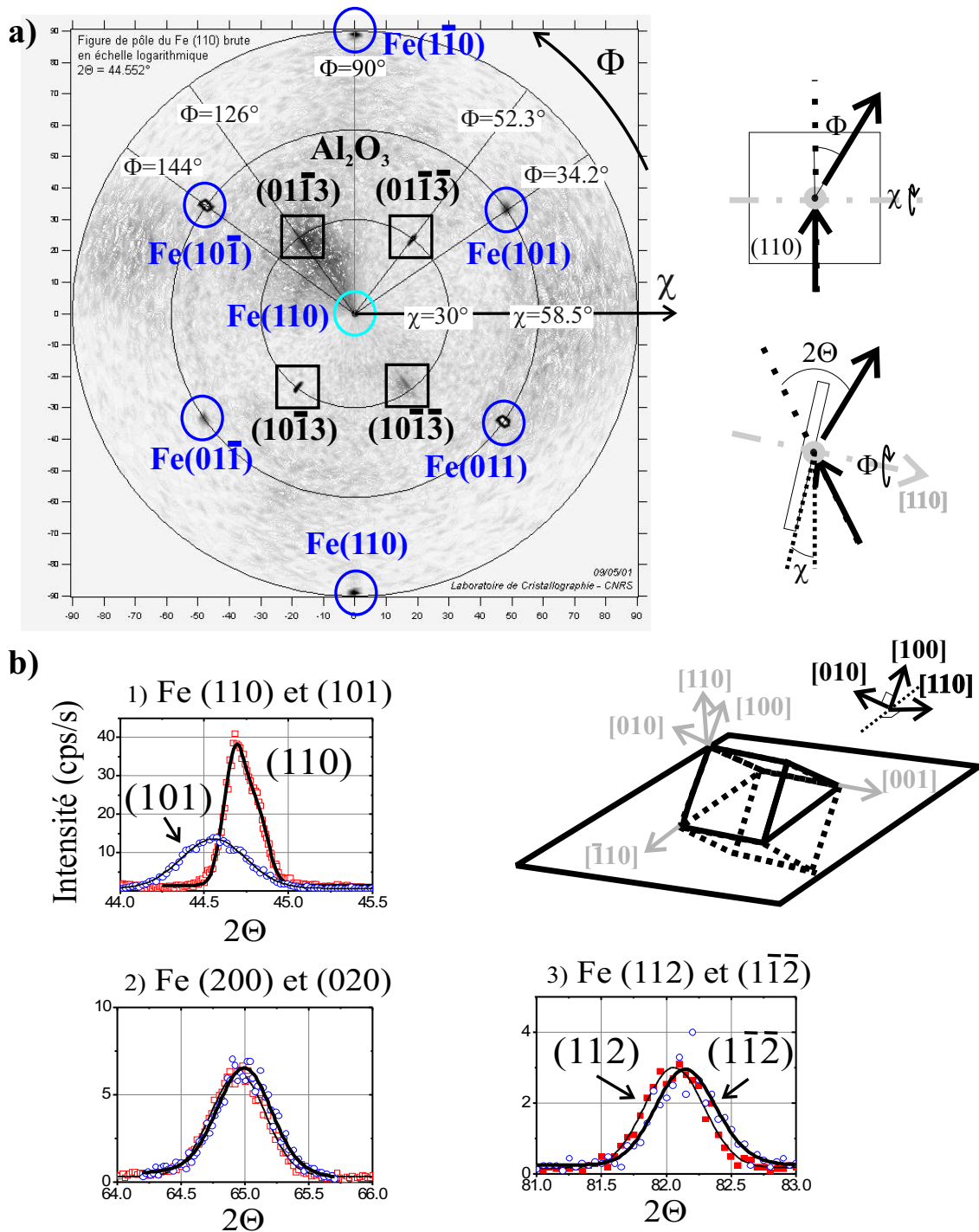


FIG. 2.15 – (a) Carte en représentation polaire des angles d'incidences ( $\chi$ ,  $\Phi$ ) pour lesquels il existe des plans de diffraction  $\{110\}$  (figure de pôles pour  $2\theta = 44.552$ ). Les angles  $\chi$ ,  $\Phi$ ,  $\theta$  par rapport à la surface de l'échantillon sont définis schématiquement à droite de la figure de pôle. (b) Diagrammes de diffraction  $\theta/2\theta$  mesurés suivant différentes incidences correspondant aux plans de diffraction : (b.1) (110) et (101), (b.2) (020) et (200), (b.3) (112) et ( $1\bar{1}\bar{2}$ ). Nous rappelons également la symétrie du cristal de Fe par rapport à la surface (110) d'épitaxie.

TAB. 2.1 – Angles de diffraction pour différents plans et détermination des distances interréticulaires à partir des diagrammes de diffraction pour différents  $\chi$ ,  $\Phi$ . Mis à part les plans (110) pour lesquels on peut distinguer les raies  $K_{\alpha_1} = 1.5405\text{\AA}$  et  $K_{\alpha_2} = 1.5443\text{\AA}$ , nous avons utilisé  $\overline{K_{\alpha}} = 1.5418\text{\AA}$  pour la détermination des déformations.

indices hkl	$\chi$	$\Phi$	$2\theta_{exp}$	$\lambda_{RX}$	$2\theta_{massif}$	$\Delta d/d$
110	0	0	44.683°	$K_{\alpha_1}$	44.673°	0.05%
220	0	0	98.945°	$K_{\alpha_1}$	98.945°	0.004%
101	58.5	34.2	44.554°	$\overline{K_{\alpha}}$	44.712°	0.34%
10-1	58.5	144	44.597°	$\overline{K_{\alpha}}$	44.712°	0.24%
01-1	58.9	215	44.574°	$\overline{K_{\alpha}}$	44.712°	0.29%
011	58.5	324.4	44.518°	$\overline{K_{\alpha}}$	44.712°	0.41%
200	44	90	64.948°	$\overline{K_{\alpha}}$	65.082°	0.18%
020	44	270	64.990°	$\overline{K_{\alpha}}$	65.082°	0.13%
112	54	0	82.067°	$\overline{K_{\alpha}}$	82.416°	0.35%
1-1-2	54	180	82.153°	$\overline{K_{\alpha}}$	82.416°	0.26%

A partir des résultats expérimentaux de diffraction on trouve que dans le plan (110) le fer est étiré par rapport au massif de  $0.15 \pm 0.1\%$  selon  $[1\bar{1}0]$  et  $0.5 \pm 0.1\%$  selon  $[001]$ . Perpendiculairement au plan de surface, le paramètre de maille est égal à celui du massif à moins de 0.03%. Pour un autre échantillon correspondant à  $\Theta = 0.5\text{nm}$  (plots compacts de dimensions  $350\text{nm} \times 250\text{nm} \times 35\text{nm}$ ), les mesures de diffraction réalisées par O. Fruchart sur un diffractomètre en incidence normale (géométrie  $\theta/2\theta$ , diffractomètre LEPES) ont montré également que la déformation résiduelle du paramètre de maille de Fe suivant  $[110]$  est inférieure à 0.05%.

Comparons nos résultats aux données de la littérature. Il a été clairement montré par STM que la relaxation des contraintes induites par le fort désaccord paramétrique entre Fe et Mo(-8.9%) se faisait par l'introduction de dislocations [Bethge95, Malzbender98, Hauschild98a]. En fonction de l'épaisseur locale de Fe, les dislocations présentent différentes configurations. Au delà de 4HA, le réseau de dislocations est de forme hexagonale, et est observable par STM jusqu'à des hauteurs de 7HA. Ensuite, la rugosité induite par le réseau de dislocations enterré n'est plus visible par STM. Pour autant, il subsiste des contraintes élastiques dans la couche de Fe. Les mesures de contraintes in-situ de Sander et al. pour le système Fe/W(110) montrent qu'une croissance libre de toute contrainte n'intervient que pour une température de dépôt de 1000K, après introduction d'un réseau de dislocations pour  $\Theta \simeq 1.5\text{MC}$ . A 700K, ils mesurent une contrainte résiduelle dans le plan de 8N/m pour  $\Theta = 6\text{MC} = 1.2\text{nm}$  [Sander98b]. Enfin, l'anisotropie dans la déformation du

TAB. 2.2 – Expansions thermiques entre 700K et 300K pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Mo, W et Fe d'après [Kirby72, Touloukian]

	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> // $\vec{c}$	Mo	W	Fe
dilatation thermique à 700K par rapport à 300K	0.32%	0.215%	0.189%	0.576%

paramètre de maille moyen de Fe a été observée par diffraction d'électrons à basse énergie (LEED) pour des échantillons avec  $\Theta < 0.5\text{MC}$  déposés à 500K, et plus généralement par STM [Hauschild98a]. Les distances interatomiques mesurées diffèrent alors des paramètres du massif de 0.3% et 1% suivant  $[1\bar{1}0]$  et  $[001]$  respectivement [Tikhov90]. Les auteurs n'ont pas pu observer cette anisotropie de paramètre de maille pour des températures plus élevées car le fer présente alors les paramètres du massif dans la limite de résolution de leur LEED.

Il faut par ailleurs noter que les déformations ont été mesurées à température ambiante, alors que la croissance est réalisée à 700K. Lors du refroidissement de l'échantillon, des contraintes peuvent être générées dans les îlots de Fe du fait de différences de coefficients de dilatation thermique entre la couche et le substrat. Dans l'hypothèse de non glissement entre la couche tampon de Mo et le saphir, la dilatation thermique de l'ensemble (Mo(110)/ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0)) est déterminée par celle du saphir. A partir des valeurs de dilatation thermiques présentées dans le Tableau 2.2, on constate que la dilatation thermique du substrat (Mo(110)/ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0)) est plus faible que celle du fer, ce qui peut conduire à une contrainte supplémentaire sur le fer à l'interface Fe/Mo à 300K. Quantitativement, lors du refroidissement de l'échantillon, le fer subit une contrainte supplémentaire à l'interface de l'ordre de +0.2%. Compte tenu des valeurs de dilatations thermiques de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Mo par rapport à Fe, le même phénomène doit exister après un dépôt sur un monocristal de Mo(110) (ou W(110)).

Le fait que le fer soit relaxé dans la direction normale de l'échantillon et étiré dans le plan est surprenant. Dans l'approximation de déformations élastiques continues, on s'attendrait à ce que la dilatation de Fe dans le plan de la couche se traduise par une contraction hors du plan. En supposant pour simplifier que la déformation  $\epsilon_{//}$  est uniforme dans le plan, la contraction  $\epsilon_{\perp}$  attendue suivant  $[110]$  est déterminée par la relation [Sander99] :

$$\epsilon_{\perp} = -\frac{c_{11} + 3c_{12} - 2c_{44}}{c_{11} + c_{12} + 2c_{44}}\epsilon_{//} = -0.676\epsilon_{//} \quad (2.7)$$

avec les constantes élastiques de Fe :  $c_{11} = 229 \times 10^6\text{Pa}$ ,  $c_{12} = 134 \times 10^6\text{Pa}$  et  $c_{44} = 115 \times 10^6\text{Pa}$ . En supposant  $\overline{\epsilon_{//}} = 0.3\%$ , on devrait mesurer  $\epsilon_{\perp} = -0.2\%$  et non pas une déformation résiduelle inférieure à  $-0.05\%$ .

Pour essayer de comprendre cette différence, revenons sur la géométrie de la mesure de diffraction et celle de l'échantillon. Jusqu'à présent nous avons interprété les diagrammes de diffraction en supposant qu'ils caractérisaient un cristal unique. Or l'échantillon présente deux types de nanostructures : les îlots compacts et les îlots biseautés.

L'intensité diffractée par un objet parallélépipédique de dimensions  $N_1a_1 \times N_2a_2 \times N_3a_3$  et pour un vecteur de diffusion  $\vec{q}$  est donnée par :

$$I_A(\vec{q}) \propto \left| \sum_{n_1} e^{in_1q_1a_1} \sum_{n_2} e^{in_2q_2a_2} \sum_{n_3} e^{in_3q_3a_3} \right|^2 \times |F(hkl)|^2 \quad (2.8)$$

avec

$$\vec{q} = \vec{q}_1 + \vec{q}_2 + \vec{q}_3 \quad (2.9)$$

et  $(\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3)$  une maille de l'objet considéré et  $F_{hkl}$  le facteur de structure correspondant.

En particulier, lorsque  $\vec{q}$  satisfait les conditions de Bragg,

$$\vec{q} = h\vec{a}_1^* + k\vec{a}_2^* + l\vec{a}_3^* \quad , \quad \vec{a}_i^* = 2\pi \frac{\vec{a}_j \times \vec{a}_k}{(\vec{a}_i \times \vec{a}_j) \cdot \vec{a}_k} \quad (2.10)$$

La formule 2.8 peut également s'écrire :

$$I_A(\vec{q}) \propto \left[ \frac{\sin^2(N_1a_1q_1/2)}{\sin^2(a_1q_1/2)} \right] \left[ \frac{\sin^2(N_2a_2q_2/2)}{\sin^2(a_2q_2/2)} \right] \left[ \frac{\sin^2(N_3a_3q_3/2)}{\sin^2(a_3q_3/2)} \right] \times |F_{hkl}|^2 \quad (2.11)$$

Lorsqu'on considère un diagramme de diffraction  $\theta/2\theta$ , le vecteur de diffusion est normal aux plans  $(hkl)$  étudiés, et son amplitude varie avec  $\theta$  :

$$\vec{q} = f(\theta)(h\vec{a}_1^* + k\vec{a}_2^* + l\vec{a}_3^*) \quad \text{avec} \quad f(\theta) = \frac{4\pi}{\lambda} \frac{\sin(\theta)}{|(h\vec{a}_1^* + k\vec{a}_2^* + l\vec{a}_3^*)|} \quad (2.12)$$

La forme du pic de diffraction dans le diagramme  $\theta/2\theta$  est donnée par :

$$I(\theta) \propto \left[ \frac{\sin^2(\pi N_1 f(\theta) h)}{\sin^2(\pi f(\theta) h)} \right] \left[ \frac{\sin^2(\pi N_2 f(\theta) k)}{\sin^2(\pi f(\theta) k)} \right] \left[ \frac{\sin^2(\pi N_3 f(\theta) l)}{\sin^2(\pi f(\theta) l)} \right] \times |F_{hkl}|^2 \quad (2.13)$$

En incidence normale, le vecteur de diffusion est  $\vec{q} = f(\theta)k\vec{a}_3^*$  et le diagramme de diffraction correspondra à :

$$I(\theta) \propto N_1^2 N_2^2 \left[ \frac{\sin^2(\pi N_3 f(\theta) l)}{\sin^2(\pi f(\theta) l)} \right] \times |F_{hkl}|^2 \quad (2.14)$$

La largeur du pic de diffraction va donc fortement dépendre de la longueur de cohérence de l'objet, correspondant à  $N_3a_3$ . Expérimentalement, nous avons systématiquement trouvé  $N_3a_3$  égale à l'épaisseur déposée pour des couches minces épitaxiées de Mo, W, Fe d'épaisseur supérieures à 10nm. Il faut noter en effet que le pic de diffraction sera d'autant plus étalé autour de  $\theta_{Bragg}$  et donc difficilement identifiable par rapport au bruit de fond que  $N_3$  est petit, comme l'illustre la Figure 2.16a. Par opposition, le pic de diffraction s'apparente à un pic de Dirac dans la limite d'un cristal infini dans la direction du vecteur de diffusion. Ainsi, le paramètre hors du plan de couches ultra-minces est très difficilement mesurable par diffraction de rayons X et est généralement estimé par un calcul en modèle continu de déformations élastiques (Eq. 2.7) à partir des déformations planaires déterminées soit en diffraction de rayons X en incidence rasante soit en diffraction d'électrons (LEED, RHEED).

En incidence oblique, même faible, la forme du pic de diffraction pourra être détectée lorsque les longueurs de cohérence des objets qui diffractent,  $N_2a_2$  et  $N_3a_3$ , sont suffisamment grandes. On accède alors conjointement aux différents paramètres hors du plan et dans le plan. L'interprétation des pics en incidence normale et oblique est donc qualitativement différente.

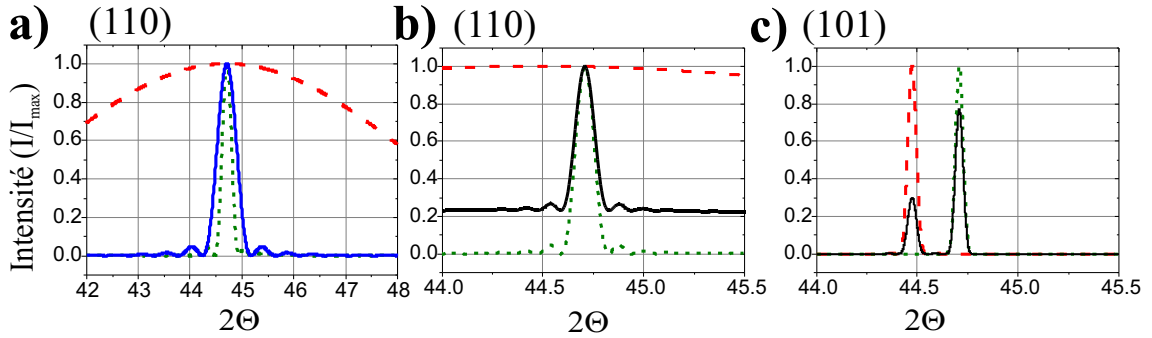


FIG. 2.16 – Diagrammes de diffraction calculés à partir des équations 2.14 et 2.13 et en considérant : - deux types d'îlots A et B, les premiers relaxés avec le paramètre du fer massif et les autres, 3 fois moins volumineux, présentant une déformation isotrope de +0.5%, - avec  $\lambda = 1.5418\text{\AA}$ . (a) En incidence normale, pic de diffraction de plans Fe(110) pour des longueurs de cohérence correspondant à  $N_3 = 3$  (tirets),  $N_3 = 50$  (ligne continue) et  $N_3 = 100$  (pointillés). (b) En incidence normale avec  $N_3^A = 200$  et  $N_3^B = 3$  correspondant aux valeurs expérimentales (c) Avec une incidence définie par ( $\chi = 54.74^\circ$ ,  $\Phi = 35.26^\circ$ ) correspondant aux plans Fe(101) des longueurs de cohérence suivant Fe[110] identiques à b, et qui ont été réduites à  $N_i = 200$  dans le plan pour rendre lisible la figure.

Dans le cas qui nous intéresse, il faut considérer qu'il existe deux catégories d'objets, les îlots compacts et les îlots biseautés, qui ont des dimensions différentes et

qui devraient contribuer différemment au signal de diffraction en fonction de l'angle d'incidence. Les deux catégories d'îlots peuvent être décrites en considérant une maille élémentaire définie par  $\vec{a}_1 = \vec{d}_{[001]}$ ,  $\vec{a}_2 = \vec{d}_{[1\bar{1}0]}$ ,  $\vec{a}_3 = \vec{d}_{[110]}$ . En faisant l'approximation d'une forme parallélépipédique, les dimensions des îlots correspondent à  $N_1^A = 2000$ ,  $N_2^A = 1000$ ,  $N_1^A = 200$  pour les îlots compacts et  $N_1^B = 4400$ ,  $N_1^B = 3000$ ,  $N_1^B = 3$  pour les îlots biseautés. Le spectre de diffraction correspondra à la somme des intensités diffractées par les deux catégories d'îlots :

$$I_{tot}(\theta) = \eta_A I_B(\theta) + \eta_B I_B(\theta) \quad (2.15)$$

où  $\eta_A$  et  $\eta_B$  sont les densités respectives des deux catégories d'îlots. Il faut noter qu'étant donnée la maille que nous nous sommes choisie (symétrie orthorhombique face centrée), le facteur de structure  $F_{hkl}$  ne sera différent de 0 que pour  $h, k, l$  de même parité.

La Figure 2.16b-c présente les diagrammes de diffraction simulés en incidence normale ( $h = 0, k = 0, l = 1$ ) et pour un angle d'incidence ( $\chi = 54.74^\circ$ ,  $\Phi = 35.26^\circ$ ) correspondant aux plans de diffraction Fe(101) ( $h = 1, k = 1, l = 1$ ). Nous avons également considéré pour les îlots biseautés une déformation isotrope dans le plan de  $\epsilon_{//} + 0.5\%$  par rapport au Fe massif, et  $\frac{\eta_B}{\eta_A} = 3$ .

A partir des diagrammes de diffraction calculés, on vérifie qu'en incidence normale, le pic de diffraction mesuré est représentatif des îlots compacts, la contribution des îlots biseautés se confondant dans le fond continu. Par contre, en incidence oblique, la contribution des îlots biseautés n'est plus négligeable et doit être mesurée. Il faut noter que la largeur des pics de diffraction calculés est beaucoup plus étroite que les pics mesurés (cf. Figure 2.15). Par rapport à la Figure 2.16c, les deux pics expérimentaux se chevauchent très largement. Le paramètre déduit de la position moyenne du pic n'est donc pas celui des îlots compacts. Nous pensons que cet effet intervient dans nos mesures. Cependant, une analyse plus poussée passe par la mesure d'échantillons ne comportant que l'un ou l'autre des deux types d'îlots. Notons que la largeur des pics obtenus expérimentalement peut être reliée à une surestimation de la longueur de cohérence (considérée égale à la taille des îlots). On peut également surestimer la longueur de cohérence des structures en ne prenant pas en compte la longueur de cohérence finie du faisceau de rayons X, qui peut être plus petite que la dimension des îlots. Une autre éventualité est une dépendance avec la géométrie de la mesure par rapport à la surface de l'échantillon ou à l'alignement des fentes.

En conclusion de l'analyse des mesures de diffraction, il semble que les îlots compacts et les îlots biseautés ne sont pas également relaxés. Les mesures en incidence normale nous indiquent que les îlots compacts sont en moyenne complètement relaxés. Les mesures en incidence oblique mettent en évidence une contrainte résiduelle

planaire anisotrope :  $\epsilon_{[1\bar{1}0]} \simeq +0.15\%$  et  $\epsilon_{[001]} \simeq +0.5\%$ . Du fait de la largeur des pics de diffraction, il ne nous a pas été possible de déterminer dans quelle mesure les déformations mesurées dans le plan de l'échantillon sont caractéristiques des îlots biseautés et des îlots compacts, ou seulement aux îlots biseautés les îlots compacts étant alors complètement relaxés.

## 2.5 Forme d'équilibre des îlots compacts

Nous avons montré dans les sections précédentes que la croissance de Fe sur Mo(110) à  $T_s \geq 600K$  entraîne, majoritairement, la formation d'une assemblée d'îlots compacts présentant la même morphologie et orientés dans la même direction [001]. Les îlots sont délimités par des facettes correspondant à des plans cristallographiques du fer bcc. Les îlots présentent pour un de taux de couverture supérieur à 1nm c'est à dire pour des dimensions moyennes supérieures à  $400nm \times 250nm \times 40nm$ , des rapports d'aspect latéral  $r = L/w$  et vertical  $\eta = h/w$  constants, ce qui nous amène à penser que la forme des îlots correspond à une forme d'équilibre. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons calculé la forme d'équilibre d'un cristal de fer en suivant deux approches : le calcul de l'énergie d'un îlot et sa minimisation, et une approche géométrique de type Wulff.

### 2.5.1 Hypothèses pour les calculs

La forme d'équilibre d'un îlot déposé sur un substrat de nature différente est celle qui minimise la somme des énergies de surface/interface et de l'énergie élastique du système. Le calcul des contraintes élastiques dans un îlot tridimensionnel n'est pas trivial. Les modèles considèrent en général des variations continues des déformations élastiques et se réduisent à un calcul à 2 dimensions [Tersoff93, Müller98]. Dans le cas de la croissance de Fe/Mo(110) à haute température, il se crée un réseau de dislocations entre le premier et le deuxième plan atomique de Fe, les couches suivantes croissant avec un paramètre de maille très proche de celui du fer massif. Nous faisons l'hypothèse que les contraintes élastiques résiduelles jouent un rôle non significatif dans la détermination de la forme d'équilibre pour des îlots dont la hauteur est supérieure à 40nm. Cette hypothèse sera discutée de façon plus quantitative après la présentation et la résolution des modèles. Pour le calcul de la forme d'équilibre nous ne considérerons donc dans notre cas que la minimisation des énergies de surface et d'interface.

La contribution d'énergie de surface provient des différentes facettes Fe/UHV de l'îlot. Les surfaces à prendre en compte pour la minimisation sont les plans cristallographiques de bas indices du fer bcc. Ce sont en effet ces plans denses qui

TAB. 2.3 – Les différentes facettes pouvant intervenir dans la minimisation de l'énergie de surface/interface d'un cristal de fer bcc, et les densités d'énergie correspondantes, d'après [Vitos98]

Facettes Fe (bcc)	{100}	{310}	{110}	{211}	{111}
$\gamma(J/m^2)$	2.222	2.393	2.430	2.589	2.694

ont une énergie plus faible et qui se formeront au détriment des plans de plus hauts indices. Les valeurs des énergies de surface ne sont pas facilement mesurables. Nous utiliserons les valeurs calculées par Vitos et al. par une méthode basée sur la théorie de la fonctionnelle de la densité [Vitos98]. Les facettes de plus bas indices du Fe bcc et leur densité d'énergie sont rapportées dans le tableau 2.3.

Dans le calcul de minimisation, il faut également tenir compte d'une énergie d'interface, puisque nous nous intéressons à la forme d'équilibre d'un cristal de fer déposé sur une surface. Dans le cas de la croissance de Fe/Mo(110), nous avons vu que les îlots se nucléent sur une couche continue pseudomorphe de Fe qui mouille la surface de Mo. En négligeant l'influence de la proximité du Mo sur l'énergie de surface de la monocouche de fer, l'énergie d'interface devrait être nulle sur la base de critères uniquement chimiques. Cependant, tout accroissement de la base des îlots nécessite l'extension du réseau de dislocations d'interface, et par conséquent implique un coût supplémentaire d'énergie élastique. L'influence des contraintes élastiques liées aux dislocations décroît exponentiellement avec la distance à la fois dans les îlots de fer et dans la couche tampon de Mo, avec une portée comparable à l'espacement inter-dislocation, soit environ 3nm ici. En conséquence, pour des îlots de hauteur supérieure à 40nm, nous pouvons considérer que ces contraintes élastiques sont localisées à l'interface Fe/Mo et peuvent donc être prises en compte comme un terme d'énergie d'interface  $\gamma_{\text{int}}$ .  $\gamma_{\text{int}}$  est un paramètre phénoménologique, qui est nécessairement positif comme nous venons de le discuter, et qui résulte de l'introduction de dislocations à l'interface entre l'îlot et la couche continue qui le supporte. Dans cette approche, la croissance de type SK est expliquée par une énergie de mouillage négative à l'échelle de la couche pseudomorphe (origine chimique), alors que pour les couches ultérieures l'énergie d'interface devient positive du fait des dislocations, déclenchant la croissance d'îlots.

## 2.5.2 Calcul des énergies de surface et d'interface et minimisation

Dans cette première approche simplifiée, nous considérons un îlot dont la forme reprend les caractéristiques essentielles déduites des observations expérimentales et rappelées sur la Figure 2.17. Nous n'allons donc pas considérer le cas le plus général,

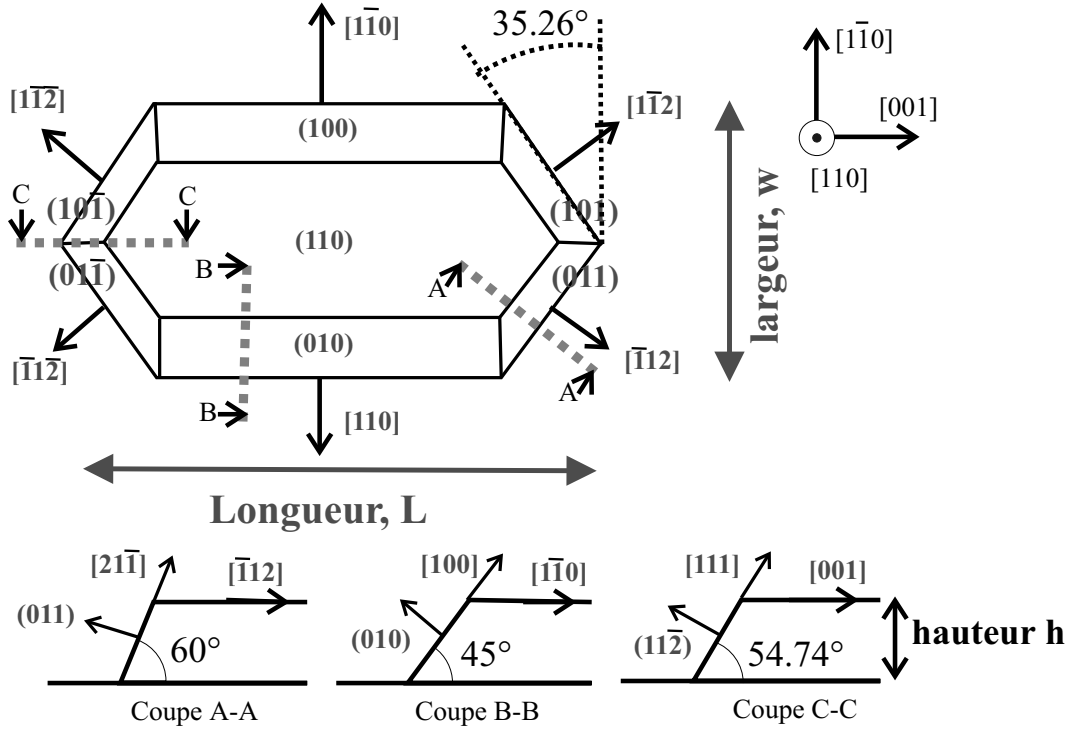


FIG. 2.17 – Schéma représentant la géométrie des îlots considérée pour le calcul de l'énergie de surface/interface. La longueur  $L$ , la largeur  $w$  et la hauteur  $h$  sont les paramètres du modèle.

mais prendre en compte uniquement les facettes de type  $\{110\}$  et  $\{001\}$ , mises en évidence par AFM et RHEED. Ainsi les facettes de type  $\{310\}$  et  $\{211\}$  qui représentent une surface peu importante, ne seront pas prises en compte. La validité de cette hypothèse sera discutée après la présentation des modèles. Par ailleurs, tout accroissement de l'interface s'accompagne d'un gain d'énergie de la couche pseudomorphe et correspond à une réduction de la surface de la couche pseudomorphe libre, et de ce fait, l'énergie à prendre en compte pour l'interface est  $(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}})S_{\text{int}}$ . Ceci revient en fait à minimiser l'énergie d'un système comprenant le plot et la couche pseudomorphe environnante.

L'énergie de surface/interface pour un îlot avec des facettes  $\{110\}$  et  $\{100\}$ , s'écrit :

$$E_{\text{tot}} = (\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}})S_{\text{int}} + \sum \gamma_i S_i \quad (2.16)$$

soit

$$E_{\text{tot}} = \gamma_{\text{int}}(-w^2/(2\sqrt{2}) + wL) + \gamma_{\{110\}}(-\sqrt{2}h^2 + hw2\sqrt{2} - 2hL) + 2h\gamma_{\{100\}}(-w + \sqrt{2}L) \quad (2.17)$$

où  $\gamma_{\{110\}}$  et  $\gamma_{\{100\}}$  sont les densités d'énergie des facettes de type  $\{110\}$  et  $\{100\}$  respectivement.

De façon à déterminer la forme d'équilibre d'un îlot contenant un nombre donné d'atomes,  $E_{\text{tot}}$  doit être minimisée avec la contrainte de conserver le volume  $V_0$  constant. Deux paramètres adimensionnels suffisent alors pour décrire le système. Nous utiliserons en l'occurrence les rapports d'aspects  $\eta = h/w$  et  $r = L/w$  déjà utilisés dans la partie expérimentale. Pour garder la géométrie compacte de l'îlot,  $\eta$  ne peut varier qu'entre 0 et 0.5, et  $r$  entre  $1/\sqrt{2}$  et  $\infty$ .

Le volume  $V_0$  de l'îlot s'écrit :

$$V_0 = Lwh - hw^2/(2\sqrt{2}) - Lh^2 + h^3\sqrt{2}/3 \quad (2.18)$$

et l'expression de l'énergie de surface/interface peut alors s'écrire :

$$E_{\text{tot}} = (V_0)^{2/3} \frac{[\gamma_{\text{int}}(-1/(2\sqrt{2}) + r) + \gamma_{\{110\}}(-\sqrt{2}\eta^2 + \eta 2\sqrt{2} - 2\eta r) + 2\eta\gamma_{\{100\}}(-1 + \sqrt{2}r)]}{[r\eta - \eta/(2\sqrt{2}) - r\eta^2 + \eta^3\sqrt{2}/3]^{2/3}} \quad (2.19)$$

qui doit être minimisée par rapport à  $r$  et  $\eta$ .

On obtient alors le système d'équations :

$$\frac{\partial E_{\text{tot}}}{\partial r} = \eta \left[ (\gamma_{\text{int}} - 2\eta\gamma_{\{110\}} + 2\sqrt{2}\eta\gamma_{\{100\}}) \left( r - \frac{1}{2\sqrt{2}} - r\eta + \eta^2 \frac{\sqrt{2}}{3} \right) - (\eta - 1) \left( \gamma_{\text{int}} \left( \frac{1}{2\sqrt{2}} - r \right) + \eta(\gamma_{\{110\}}(-2\sqrt{2} + \sqrt{2}\eta + 2r) + 2\gamma_{\{100\}}(1 - \sqrt{2}r)) \right) \right] \frac{1}{(\eta(r - \frac{1}{2\sqrt{2}} - r\eta + \eta^2 \frac{\sqrt{2}}{3}))^{5/3}} = 0 \quad (2.20)$$

$$\frac{\partial E_{\text{tot}}}{\partial \eta} = \frac{1}{3} \left[ -\gamma_{\text{int}}(-1 + 2\eta) \left( \frac{-1}{4} + \sqrt{2}r - 2r^2 + \sqrt{2}\eta \left( \frac{1}{\sqrt{2}} + r \right) \right) + \eta \left[ \gamma_{\{100\}} \left( \frac{1}{\sqrt{2}} + \eta^2 \left( \frac{1}{\sqrt{2}} - r \right) - 3r + \sqrt{2}r^2 + \eta r(-1 + \sqrt{2}r) \right) + \gamma_{\{110\}}(-1 + \frac{5}{\sqrt{2}}r - r^2 + 4\eta^2(-1 + \sqrt{2}r) - \eta(-1 + \sqrt{2}r + r^2)) \right] \right] \frac{1}{(\eta(r - \frac{1}{2\sqrt{2}} - r\eta + \eta^2 \frac{\sqrt{2}}{3}))^{5/3}} = 0 \quad (2.21)$$

L'équation 2.21 permet d'exprimer  $r$  en fonction de  $\eta$  :

$$r = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\gamma_{\text{int}} + 2\gamma_{\{110\}} - 4\eta\gamma_{\{110\}} + 2\sqrt{2}\eta\gamma_{\{100\}}}{\gamma_{\text{int}} - 2\gamma_{\{110\}} + 2\sqrt{2}\eta\gamma_{\{100\}}} \quad (2.22)$$

Ensuite, en utilisant les équations 2.21 et 2.22 on obtient une équation du troisième degré sur  $\eta$  qui ne dépend que des densités d'énergie de surface et d'interface :

$$\left\{ \eta - \frac{\gamma_{\text{int}}}{2(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \right\} \times \left\{ \eta^2 \left[ 4\gamma_{\{110\}} - 2\sqrt{2}\gamma_{\{100\}} \right] + \eta \left[ -\gamma_{\text{int}} - 6\gamma_{\{110\}} + 2\sqrt{2}\gamma_{\{100\}} \right] + \left[ \frac{2\gamma_{\text{int}}\gamma_{\{110\}} + 12\gamma_{\{110\}}^2 - \sqrt{2}\gamma_{\text{int}}\gamma_{\{100\}} - 10\sqrt{2}\gamma_{\{110\}}\gamma_{\{100\}} + 4\gamma_{\{100\}}^2}{4\gamma_{\{110\}} - 2\sqrt{2}\gamma_{\{100\}}} \right] \right\} = 0 \quad (2.23)$$

Le système d'équations 2.21 et 2.21 admet donc trois solutions  $(r, \eta)$  avec  $\eta$  solution de l'équation 2.23 et  $r$  déduit de l'expression 2.22.

L'étude du signe des dérivées secondes de  $E_{\text{tot}}$  pour ces différentes solutions avec  $\gamma_{\{110\}} = 2.43\text{J/m}^2$ ,  $\gamma_{\{100\}} = 2.22\text{J/m}^2$  et  $\gamma_{\text{int}} > 0$ , montre que la seule solution correspondant à un minimum de l'énergie de surface/interface est :

$$\eta = \frac{\gamma_{\text{int}}}{2(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \quad (2.24)$$

$$\text{et } r = \frac{(\gamma_{\text{int}} + \gamma_{\{110\}})}{\sqrt{2}(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \quad (2.25)$$

Ce calcul nous permet d'exprimer le couple de rapports d'aspect correspondant à la forme d'équilibre du cristal de Fe en fonction du paramètre  $\gamma_{\text{int}}$ . L'énergie totale de l'îlot peut être aussi exprimée en fonction de ce paramètre.

Il faut rappeler cependant que la validité du calcul que nous venons de présenter est restreinte à l'hypothèse que la forme d'équilibre possède seulement des facettes de type  $\{110\}$  et  $\{100\}$  comme définies par la Figure 2.17. La validité de ces hypothèses ne peut être confirmée que par une approche plus générale qui tient compte de toutes les facettes possibles. Nous avons de ce fait également considéré une approche de type Wulff.

### 2.5.3 Approche de Wulff

La forme d'équilibre d'un cristal peut être déterminée par une approche géométrique de type Wulff. Le théorème de Wulff, dont la justification est rappelée (section 1.1.4, CHAP. 1), donne des critères sur la géométrie du cristal qui minimise

son énergie de surface :

$$\frac{\gamma_i}{h_i} = \text{constante} \quad (2.26)$$

avec  $\gamma_i$ ,  $\gamma_S$  les densités d'énergie des différentes facettes et  $h_i$  les distances de chaque facette au centre du cristal. Cette approche a été adaptée au cas d'un cristal supporté. Tenir compte du fait que le cristal repose sur une surface de nature différente revient en fait à couper le polyèdre de Wulff par un demi-espace correspondant au substrat. D'après le théorème de Wulff-Kaichev, la position du plan de coupe est définie en fonction de la différence entre l'énergie d'interface  $\gamma_{\text{int}}$  et l'énergie du substrat  $\gamma_S = \gamma_{\{110\}}$ , suivant :

$$\frac{\gamma_i}{h_i} = \frac{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_S)}{h_{\text{int}}} = \text{constante} \quad (2.27)$$

où  $\gamma_{\text{int}}$  et  $\gamma_S$  sont les densités d'énergie de l'interface et de la surface du substrat respectivement, et  $h_{\text{int}}$  la distance entre le centre du cristal et l'interface (cf. Figure 2.18f).

La Figure 2.18a1-c1 présente la forme d'équilibre d'un cristal de Fe (polyèdre de Wulff) calculée pour différents cas. En (a) on n'a considéré que les facettes  $\{110\}$  et  $\{100\}$  comme dans le calcul d'énergie présenté au dessus (partie 2.5.2). En (b), les facettes  $\{310\}$  ont également été prises en compte. Enfin sur la Figure 2.18c1, toutes les facettes  $\{100\}$ ,  $\{310\}$ ,  $\{110\}$ ,  $\{211\}$  et  $\{111\}$  ont été utilisées. Les valeurs de densités d'énergie utilisées sont celles présentées dans le Tableau 2.3. Une des hauteurs, ici  $H_{(110)}$ , sert de paramètre pour définir le volume de l'îlot ( $H_{(110)}$  est proportionnel à  $V_0$ ). Il faut noter que les facettes  $\{111\}$  n'apparaissent pas dans la forme d'équilibre. Nous avons également représenté sur la Figure 2.18(a2-c2) les structures d'équilibre des cristaux de Fe supportés correspondant à  $\gamma_{\text{int}} = 0.25$  et  $\gamma_{\{110\}} = 0.6\text{J/m}^2$  (nous verrons plus loin que c'est la valeur que nous avons pu déterminer en ajustant les données expérimentales au modèle).

Les normales aux facettes et leur hauteur par rapport au centre du cristal étant connues au paramètre  $H_{(110)}$  près, il est possible de calculer les équations de toutes les facettes introduites pour minimiser l'énergie de surface et d'interface du cristal de Fe. A partir de simples considérations géométriques, on détermine les relations analytiques de la longueur, la largeur et la hauteur de l'îlot en fonction de  $\gamma_{\text{int}}$  et du paramètre de volume  $H_{(110)}$ . Les relations analytiques des rapports d'aspect  $r$  et  $\eta$  en fonction de  $\gamma_{\text{int}}$  en découlent.

Si on considère dans un premier temps le cas où le cristal est délimité uniquement par des plans  $\{110\}$  et  $\{010\}$ , on trouve :

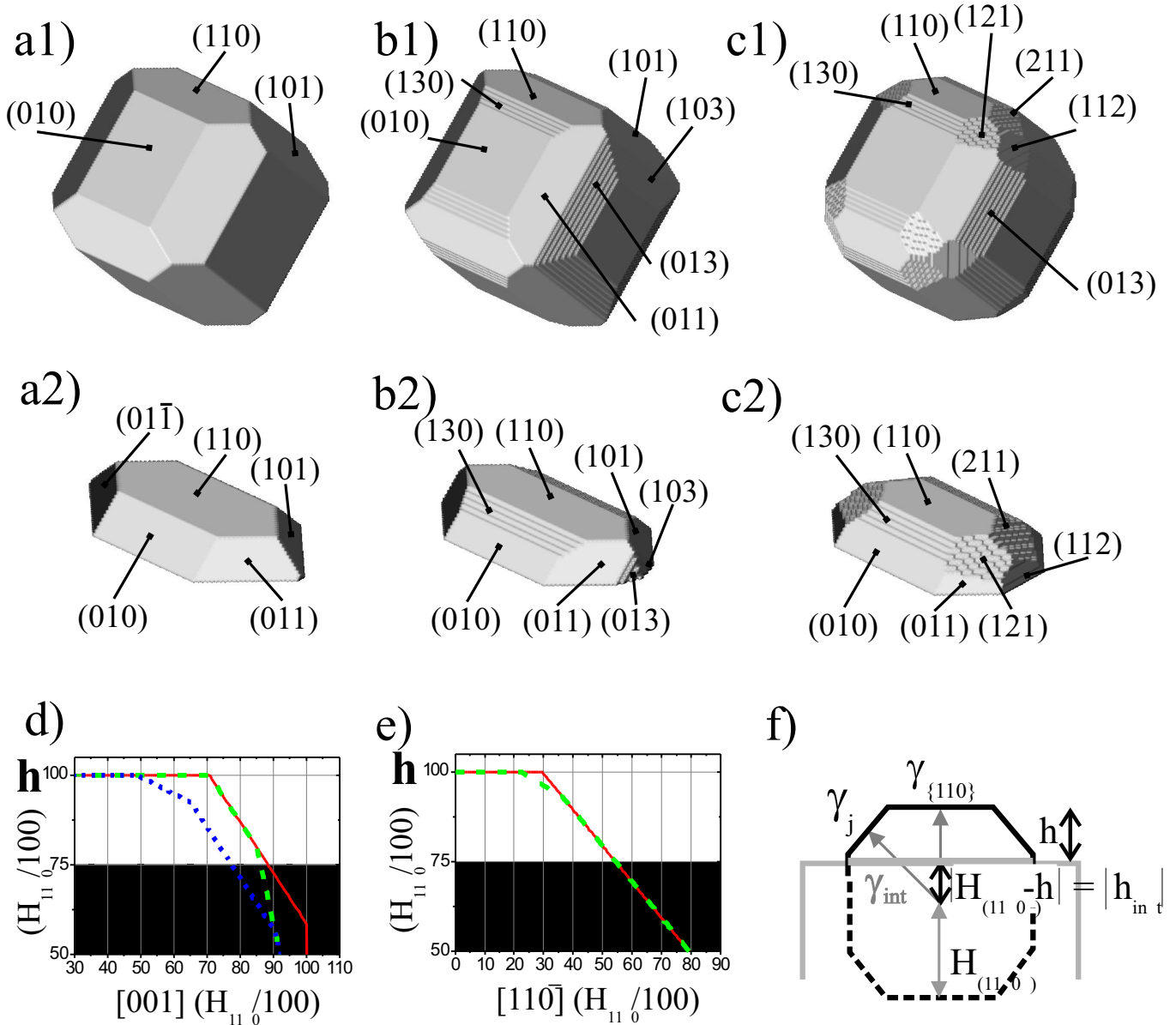


FIG. 2.18 – (a1-c1) Polyèdres de Wulff et (a2-c2) polyèdres de Wulff-Kaichev calculés pour Fe à partir des énergies de surface mentionnées dans le Tableau 2.3. (a) seules les facettes  $\{110\}$  et  $\{100\}$  sont prises en compte, (b) avec également les facettes  $\{310\}$  puis (c)  $\{211\}$ . Les polyèdres de Wulff-Kaichev ont été calculés pour  $\gamma_{int} = 0.6\text{J/m}^2$ . Il est également présenté une section des formes d'équilibre du cristal supporté pour les différents cas suivant (d) la longueur et la largeur (e) des îlots, c'est à dire suivant  $[1\bar{1}0]$  et  $[001]$ . (f) Rappel du principe de la construction du polyèdre de Wulff-Kaichev

– pour  $0 < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}(\sqrt{2} - 1)$  ( $\simeq 1\text{J/m}^2$ )

$$L = \frac{H_{(110)}}{\gamma_{\{110\}}} \sqrt{2} (\gamma_{\text{int}} + \gamma_{\{110\}}) \quad (2.28)$$

$$w = \frac{H_{(110)}}{\gamma_{\{110\}}} 2 (\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2} \gamma_{\{100\}}) \quad (2.29)$$

$$h = \frac{H_{(110)}}{\gamma_{\{110\}}} \gamma_{\text{int}} \quad (2.30)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}}(\sqrt{2} - 1) < \gamma_{\text{int}} < 2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{100\}}$  ( $\simeq 1.72\text{J/m}^2$ )

$$L = 2H_{(110)} \quad (2.31)$$

$$w = \frac{H_{(110)}}{\gamma_{\{110\}}} 2 (\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2} \gamma_{\{100\}}) \quad (2.32)$$

$$h = \frac{H_{(110)}}{\gamma_{\{110\}}} \gamma_{\text{int}} \quad (2.33)$$

– et pour  $2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{100\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}$  ( $= 2.43\text{J/m}^2$ )

$$L = 2H_{(110)} \quad (2.34)$$

$$w = 2H_{(110)} \quad (2.35)$$

$$h = \frac{H_{(110)}}{\gamma_{\{110\}}} \gamma_{\text{int}} \quad (2.36)$$

ce qui nous permet de retrouver les expressions des rapports d'aspect en fonction de  $\gamma_{\text{int}}$  dans les différents cas :

– pour  $0 < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}(\sqrt{2} - 1)$  ( $\simeq 1\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{(\gamma_{\text{int}} + \gamma_{\{110\}})}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2} \gamma_{\{100\}})} \quad (2.37)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2} \gamma_{\{100\}})} \quad (2.38)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}}(\sqrt{2} - 1) < \gamma_{\text{int}} < 2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{100\}}$  ( $\simeq 1.72\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{\gamma_{\{110\}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2} \gamma_{\{100\}})} \quad (2.39)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2} \gamma_{\{100\}})} \quad (2.40)$$

$$(2.41)$$

– et pour  $2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{100\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}$  ( $= 2.43\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = 1 \quad (2.42)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{\gamma_{\text{int}}}{2\gamma_{\{110\}}} \quad (2.43)$$

$$(2.44)$$

On retrouve les expressions des rapports d'aspect déterminés par le calcul de minimisation d'énergie qui s'avère être valides pour  $\gamma_{\text{int}} < 2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{100\}}$ .

Un autre avantage de l'approche de Wulff est que ce calcul géométrique se prolonge facilement au cas le plus général. En considérant en plus des facettes  $\{110\}$ ,  $\{100\}$ , les facettes de type  $\{310\}$  et  $\{211\}$  et en suivant la même approche on obtient pour les rapports d'aspect de l'îlot les relations suivantes :

– pour  $0 < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}} - \frac{\sqrt{3}}{2}\gamma_{\{211\}}$  ( $\simeq 0.19\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{1}{2} \frac{2\sqrt{6}\gamma_{\{211\}} - 3\sqrt{2}(\gamma_{\{110\}} - \gamma_{\text{int}})}{(2\gamma_{\text{int}} - 2\gamma_{\{110\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}})} \quad (2.45)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(2\gamma_{\text{int}} - 2\gamma_{\{110\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}})} \quad (2.46)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}} - \frac{\sqrt{3}}{2}\gamma_{\{211\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}} - \sqrt{5}\gamma_{\{310\}}$  ( $\simeq 0.22\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{6}\gamma_{\{211\}} - \sqrt{2}(\gamma_{\{110\}} - \gamma_{\text{int}})}{(2\gamma_{\text{int}} - 2\gamma_{\{110\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}})} \quad (2.47)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(2\gamma_{\text{int}} - 2\gamma_{\{110\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}})} \quad (2.48)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}} - \sqrt{5}\gamma_{\{310\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}} - \frac{3\sqrt{3}}{2}\gamma_{\{211\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}}$  ( $\simeq 1.05\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{6}\gamma_{\{211\}} - \sqrt{2}(\gamma_{\{110\}} - \gamma_{\text{int}})}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \quad (2.49)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \quad (2.50)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}} - \frac{3\sqrt{3}}{2}\gamma_{\{211\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}} - 2\sqrt{2}\gamma_{\{100\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}}$

( $\simeq 1.49\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{1}{2} \frac{\frac{2\sqrt{10}}{3}\gamma_{\{310\}} - \frac{\sqrt{2}}{3}(\gamma_{\{110\}} - \gamma_{\text{int}})}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \quad (2.51)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{100\}})} \quad (2.52)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}} - 2\sqrt{2}\gamma_{\{100\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}} < \gamma_{\text{int}} < 3\gamma_{\{110\}} - \sqrt{5}\gamma_{\{310\}}$  ( $\simeq 1.94\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{\frac{2\sqrt{10}}{3}\gamma_{\{310\}} - \frac{\sqrt{2}}{3}(\gamma_{\{110\}} - \gamma_{\text{int}})}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}})} \quad (2.53)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{5}\gamma_{\{310\}})} \quad (2.54)$$

– pour  $3\gamma_{\{110\}} - \sqrt{5}\gamma_{\{310\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}(3\sqrt{2} + 1) - 2\sqrt{5}\gamma_{\{310\}}$  ( $\simeq 2.04\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = \frac{\frac{2\sqrt{10}}{3}\gamma_{\{310\}} - \frac{\sqrt{2}}{3}(\gamma_{\{110\}} - \gamma_{\text{int}})}{2\gamma_{\{110\}}} \quad (2.55)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{\gamma_{\text{int}}}{2\gamma_{\{110\}}} \quad (2.56)$$

– pour  $\gamma_{\{110\}}(3\sqrt{2} + 1) - 2\sqrt{5}\gamma_{\{310\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}$  ( $= 2.43\text{J/m}^2$ )

$$r = \frac{L}{w} = 1 \quad (2.57)$$

$$\eta = \frac{h}{w} = \frac{\gamma_{\text{int}}}{2\gamma_{\{110\}}} \quad (2.58)$$

Nous venons de présenter deux approches permettant de déterminer la forme d'équilibre des îlots de fer déposés sur une couche pseudomorphe continue de Fe/Mo(110). En prenant en compte pour la forme du cristal les facettes  $\{110\}$  et  $\{100\}$ , les résultats des deux approches sont identiques. L'intérêt du calcul de minimisation repose sur le fait que les énergies mises en jeu sont exprimées explicitement et peuvent être comparées aux énergies élastiques pour justifier les hypothèses de calcul. L'avantage de la méthode géométrique de Wulff est sa simplicité et le fait qu'elle est généralisable à un nombre quelconque de facettes.

#### 2.5.4 Comparaison des modèles avec les observations expérimentales

La Figure 2.19 présente les variations du couple  $(r, \eta)$  minimisant l'énergie de surface/interface d'un îlot de Fe en fonction du paramètre  $\gamma_{\text{int}}$ . Notons tout d'abord

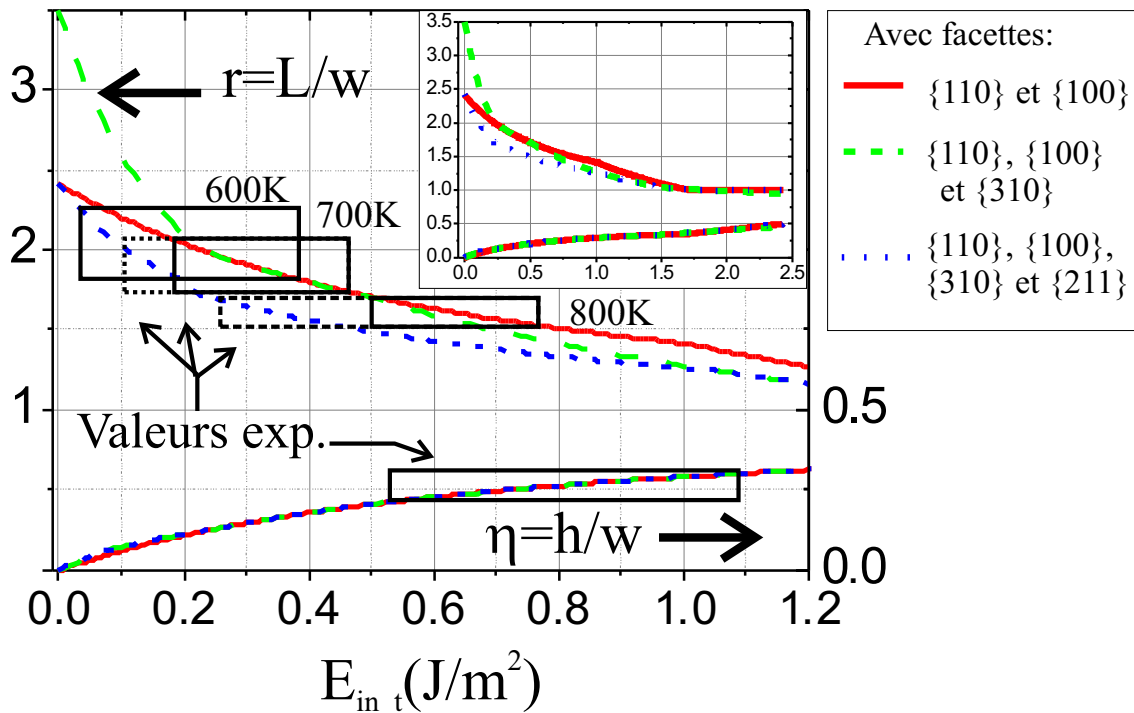


FIG. 2.19 – Variation des rapports d'aspect  $r = L/w$  et  $\eta = h/w$  en fonction de  $\gamma_{\text{int}}$ . Trois cas sont présentés suivant le nombre de facettes prises en compte. Les valeurs expérimentales avec leurs distributions sont figurées par des rectangles. En encart, variation sur toute la gamme  $0 < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}} = 2.43 \text{ J/m}^2$ .

qu'on retrouve des idées intuitives : le mouillage est favorisé si l'énergie d'interface  $\gamma_{\text{int}}$  est nulle ( $\eta$  tend alors vers 0), et au contraire, lorsque l'énergie d'interface est importante, la forme d'équilibre sera plus compacte de façon à réduire l'interface. Les résultats des calculs prenant en compte deux ( $\{110\}, \{100\}$ ), trois (+ $\{310\}$ ), ou quatre (+ $\{211\}$ ) types de facettes sont présentés. Les différences sur le rapport d'aspect vertical  $\eta = \frac{h}{w}$  sont faibles. Comme on peut le vérifier sur la Figure 2.18, elles correspondent à la présence perpendiculairement à  $[1\bar{1}0]$  de petites facettes  $\{310\}$  à l'intersection des plans (110) et (010) et à l'intersection des plans (010) et  $(\bar{1}10)$ . Les différences sont plus sensibles pour le rapport d'aspect latéral  $r = \frac{L}{w}$ . La prise en compte des facettes  $\{211\}$  entraîne une réduction notable de la longueur des îlots. La pointe des îlots est alors tronquée par les plans (112), (121) et (211) comme le montre la Figure 2.18-c,d. En ne prenant pas en compte les facettes  $\{211\}$ , l'hypothèse consistant à négliger la contribution des facettes de type  $\{310\}$  dans le calcul des rapports d'aspect est exacte pour une gamme d'énergie d'interface comprise entre 0.2 et 0.5 J/m<sup>2</sup>. La Figure 2.18-e permet de voir qu'en dehors de cette plage, des facettes  $\{310\}$  se développent à la base de l'îlot pour minimiser les

énergies de surface, ces facettes étant plus favorables que les facettes  $\{110\}$ .

La morphologie et les rapports d'aspect correspondant au minimum de l'énergie de surface/interface peuvent être comparés aux îlots observés expérimentalement. L'énergie d'interface n'est expérimentalement ni numériquement connue. Sa valeur, fixée a priori dans les calculs, correspond donc à un paramètre d'ajustement. Sur la Figure 2.19 nous avons reporté les valeurs moyennes des rapports d'aspect des îlots de Fe observées pour  $\Theta > 1\text{nm}$  (dimensions supérieures à  $400\text{nm} \times 250\text{nm} \times 40\text{nm}$ ). En particulier, pour  $T_s \simeq 800\text{K}$ ,  $\bar{\eta} = 0.27 \pm 0.03$  et  $\bar{r} = 1.6 \pm 0.1$ . Il est intéressant de voir que les deux rapports d'aspect peuvent être ajustés en utilisant la même valeur de  $\gamma_{\text{int}} = 0.6 \pm 0.15\text{J/m}^2$  avec les calculs prenant en compte les facettes  $\{110\}$ ,  $\{100\}$  et  $\{310\}$ . Lorsque les facettes  $\{211\}$  sont prises en compte, le rapport d'aspect latéral et de la forme des pointes de l'îlot calculés diffèrent des observations expérimentales. Pour  $\gamma_{\text{int}} = 0.6\text{J/m}^2$  (cf. Figure 2.18-c2), les facettes (211) sont très étendues au dépend des facettes (101) alors que ces dernières sont nettement observées expérimentalement par AFM et RHEED. Il est vraisemblable que l'énergie des facettes  $\gamma_{\{211\}}$  soit légèrement sous-estimée par Vitos par rapport à  $\gamma_{\{110\}}$ . En définitive, la forme des îlots reproduit assez fidèlement la forme d'équilibre de Fe. Les facettes, l'orientation et les rapports d'aspect des îlots s'expliquent donc par la minimisation des énergies de surface et d'interface. A 800K, la croissance est proche de l'équilibre thermodynamique de surface. Par ailleurs, nous pouvons déduire de l'ajustement des rapports d'aspect expérimentaux, la valeur de l'énergie d'interface correspondant à la présence d'un réseau de dislocations entre la couche de mouillage et l'îlot :  $\gamma_{\text{int}} = 0.6 \pm 0.15\text{J/m}^2$ . Cette valeur comprend aussi, même si il est faible, un terme d'énergie d'interface chimique entre Fe et Fe(1MC)/Mo(110).

Pour cette gamme d'énergie d'interface, le calcul simplifié ne prenant en compte que les facettes  $\{110\}$  et  $\{100\}$  n'induit pas d'erreur importante dans la forme d'équilibre prédite de l'îlot. L'équation 2.19 donne donc une bonne estimation de l'énergie de surface/interface stockée par unité de volume (plus précisément  $E_{\text{tot}}/V_0^{2/3}$ ). La Figure 2.20 représente  $E_{\text{tot}}/V_0^{2/3}$  en fonction de  $r$  et  $\eta$  pour une énergie d'interface  $\gamma_{\text{int}} = 0.6\text{J/m}^2$ . Le minimum d'énergie est obtenu pour  $r = 1.65$  et  $\eta = 0.25$ , pour lesquels  $E_{\text{tot}}/V_0^{2/3} = 4.7\text{J/m}^2$ .

Lorsque la température de dépôt est inférieure à 800K, l'accord des rapports d'aspect est moins bon (cf. Figure 2.19). On remarque en particulier que le rapport d'aspect latéral augmente lorsque  $T_s$  diminue. Cet effet pourrait être relié à des limitations cinétiques. En effet, pour atteindre la forme d'équilibre, les adatoms incorporés à un îlot doivent pouvoir diffuser librement sur les facettes de l'îlot pour atteindre la position qui permet de minimiser l'énergie de surface. Ces processus de diffusion sur les facettes et le passage des arêtes de l'îlot sont des processus

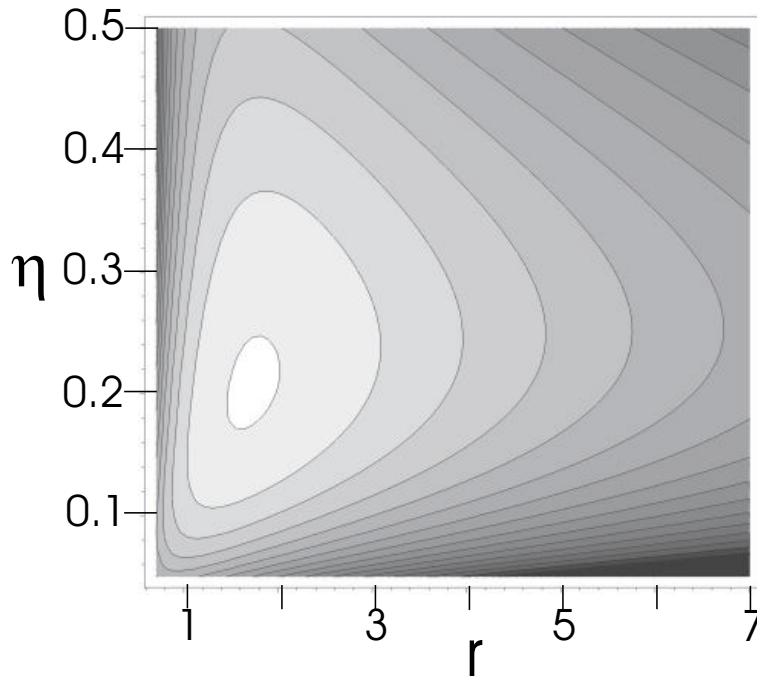


FIG. 2.20 – Nappe de l'énergie totale de surface/interface en fonction de  $r = L/w$  et  $\eta = h/w$ . Le calcul a été effectué en ne considérant que les facettes  $\{110\}$  et  $\{100\}$ . L'énergie d'interface est  $\gamma_{\text{int}} = 0.6 \pm 0.1 \text{ J/m}^2$ . Le minimum d'énergie correspond à  $E_{\text{tot}}/V_0^{2/3} = 4.7 \text{ J/m}^2$  et la différence d'énergie entre les différentes lignes est  $0.2 \text{ J/m}^2$ .

thermiquement activés. La diminution de la température peut donc se traduire par des modifications des rapports d'aspect du fait d'une moins bonne mobilité des atomes sur l'îlot de Fe.

Revenons maintenant sur l'hypothèse consistant à négliger les contraintes élastiques dans le calcul de la forme d'équilibre des îlots. Le très bon accord obtenu aux plus hautes températures, entre le calcul et l'expérience, montre que les hypothèses du modèle sont acceptables. Si l'influence des contraintes élastiques avait été non négligeable il n'y a pas de raison pour laquelle on aurait pu trouver en n'utilisant qu'un seul paramètre d'ajustement un accord simultané pour  $r$  et  $\eta$ . Une seconde indication du rôle négligeable des contraintes résiduelles vient du fait que les rapports d'aspect ne varient pas avec le taux de couverture pour  $\Theta > 2 \text{ nm}$ . L'énergie élastique dépend du volume de l'îlot alors que l'énergie de surface/interface varie avec  $V_0^{2/3}$ . Si les contraintes résiduelles avaient une valeur significative, les rapports d'aspect de l'îlot devraient donc dépendre de la taille.

Par contre, nous avons fait remarquer pour des taux de couverture plus faibles entre  $\Theta = 0.3 \text{ nm}$  et  $\Theta = 1.5 \text{ nm}$  et une température  $T_s = 700 \text{ K}$ , que les rapports

d'aspect augmentent légèrement avec le taux de couverture jusqu'à se stabiliser à leur valeur d'équilibre (cf. Figure 2.14). Cette évolution ne correspond pas à une influence de contraintes élastiques résiduelles de volume puisqu'elle devrait s'accroître avec le volume de l'îlot. Cet effet pourrait plutôt être relié à une influence des déformations élastiques localisées au voisinage de l'interface îlot/couche de mouillage, qui s'estompe complètement pour des hauteur d'îlots de l'ordre de ( $\approx 50\text{nm}$ ).

Discutons finalement du rôle des contraintes. Pour une déformation planaire isotrope  $\epsilon_{//}$ , la densité d'énergie élastique est donnée par [Sander98b] :

$$E_{\text{el}} = \epsilon_{\perp}^2 \left( \frac{c_{11}}{4} + \frac{c_{12}}{4} + \frac{c_{44}}{2} \right) + \epsilon_{\perp} \epsilon_{//} \left( \frac{c_{11}}{2} + \frac{3c_{12}}{2} - c_{44} \right) + \epsilon_{//}^2 \left( \frac{3c_{11}}{4} + \frac{5c_{12}}{4} - \frac{c_{44}}{2} \right) \quad (2.59)$$

avec pour Fe,  $c_{11} = 229\text{GPa}$ ,  $c_{12} = 134\text{GPa}$  et  $c_{44} = 115\text{GPa}$ . Les mesures de diffraction de rayons X ont mis en évidence une déformations résiduelle de fer  $\epsilon_{\perp} < 0.03\%$ , et dans le plan (110) :  $\epsilon_{1\bar{1}0} < 0.15\% \pm 0.1\%$ ,  $\epsilon_{001} < 0.5\% \pm 0.1\%$ . Un doute subsiste quant à l'origine des déformations déterminées dans le plan, qui ne proviennent pas seulement des îlots compacts mais aussi des îlots biseautés (cf. section 2.4). En supposant une contrainte résiduelle dans l'îlot de  $\epsilon_{\perp} = 0.05\%$  et  $\epsilon_{//} = 0.25\%$ , on détermine que la densité d'énergie élastique alors stockée dans l'îlot serait  $2.5 \times 10^6 \text{J/m}^3$ . Pour un îlot dont les dimensions correspondent aux dimensions moyennes observées pour l'échantillon sur lequel a été réalisées les mesures de diffraction ( $750\text{nm} \times 470\text{nm} \times 100\text{nm}$ ), la contrainte résiduelle considérée correspond à une énergie  $E/V_0^{2/3} = 0.53\text{J/m}^2$ . On peut estimer que seulement une fraction de cette énergie pourrait être gagnée en modifiant la forme de l'îlot. Du fait de la forme relativement aplatie des îlots, dans le meilleur des cas, on pourrait gagner  $\approx 10\%$  ce qui correspondrait à un gain d'énergie de  $0.05\text{J/m}^2$ . Comme la forme d'équilibre est le résultat d'une compétition entre l'énergie élastique et l'énergie de surface/interface, on peut considérer comment un gain d'énergie élastique de  $0.05\text{J/m}^2$  influencerait sur la forme d'équilibre de l'îlot. A partir de l'équation 2.19 on détermine que cet excès d'énergie de surface correspond à une variation dans les rapports d'aspect de  $\Delta r = \pm 0.4$  ou  $\Delta \eta = \pm 0.05$ . Ces écarts à la forme d'équilibre calculée sont faibles et comparables à la distribution expérimentale, ce qui confirme que les contraintes élastiques ne jouent pas un rôle prépondérant dans ce système, pour les épaisseurs d'îlots considérées ici (40nm-100nm).

## 2.6 Discussion sur la croissance simultanée des îlots compacts et biseautés

Nous avons mis en évidence que la croissance de Fe/Mo(110) dans le régime haute température,  $T_s \geq 600K$ , suit un mode Stranski-Krastanov. Après la complétion du premier plan atomique de mouillage, il se forme simultanément deux catégories d'îlots 3D : des îlots plats qualifiés d'îlots biseautés (cf. section 2.2) et des îlots compacts (cf. section 2.3). La coexistence de deux types d'îlots de Fe sur Mo(110) ou W(110) n'a jusqu'à présent jamais été rapportée.

Les îlots compacts représentent la majorité du volume de fer déposé. Nous avons déterminé par diffraction de rayons X que les îlots compacts sont complètement relaxés hors du plan, suivant la direction [110]. Un doute subsiste quant aux déformations des îlots compacts dans le plan car les pics de diffraction mesurés en incidence non normale, qui permettent de remonter aux déformations résiduelles dans le plan de l'échantillon, somment les contributions simultanées des îlots compacts et des îlots biseautés, qui n'ont pas pu être séparées. Expérimentalement, les déformations moyennes dans le plan sont néanmoins inférieures à 0.5% suivant [001] et 0.15% suivant  $[1\bar{1}0]$ . Nous avons aussi montré que l'orientation et la forme facettée des îlots compacts correspond à la forme d'équilibre d'un cristal de Fe supporté. Pour ces températures de dépôt,  $600K \leq T_s \leq 800K$ , la croissance est proche de l'équilibre thermodynamique (de surface). La forme compacte des îlots permet de minimiser l'énergie élastique et l'énergie de surface/interface d'un îlot.

Les îlots biseautés ne correspondent pas à une forme d'équilibre. Ils présentent une hauteur constante ( $\approx 1\text{nm}$ ), et une taille latérale qui croît avec le taux de couverture jusqu'à la formation d'une couche quasi-continue de Fe de  $\approx 1\text{nm}$  de haut. Le paramètre de maille est très proche de celui du massif ( $\approx 0.5\%$  suivant [001] et  $\approx 0.15\%$  suivant  $[1\bar{1}0]$ ).

D'un point de vue énergétique, les îlots compacts sont les plus stables et on peut se poser la question de savoir pourquoi les îlots biseautés se forment et pourquoi ils ne se transforment pas en îlots compacts.

Le mode de croissance que nous avons mis en évidence pour le système Fe/Mo(110) n'est pas habituel. Le début de la croissance correspond bien à un mode de type Stranski-Krastanov, avec une première couche pseudomorphe de mouillage suivie de la formation d'îlots tridimensionnels : les îlots biseautés. A partir d'un taux de couverture ( $\Theta \approx 0.35\text{MC}$ ), il se forme également des îlots compacts plus largement espacés, qui comme nous l'avons rappelé au dessus, correspondent à la forme d'équilibre d'un cristal de Fe. Dans la suite du dépôt, les îlots compacts absorbent 5 fois plus de matière que les îlots biseautés. Nous avons observé que la nucléation des îlots compacts ne correspond pas à une nucléation sur des défauts mais se rapporte plutôt à la cinétique et au libre parcours moyen des atomes de Fe, indépendamment

## 2.6. DISCUSSION SUR LA CROISSANCE SIMULTANÉE DES ÎLOTS COMPACTS ET BISEAUTÉS

de la présence des îlots biseautés.

D'autres croissances bimodales d'îlots ont été rapportées dans la littérature, en particulier pour Ge/Si(001) [Mo90]. Dans ce système a été observée la formation de petits îlots facettés de hauteur 2 à 4nm ("hut clusters"), très denses, entre les îlots macroscopiques de Ge plus largement séparés (de hauteur  $\approx 25$ nm). Les "hut clusters" correspondent en fait à une phase métastable pour le système Ge/Si(001) : sous l'effet d'un recuit ils disparaissent presque tous au profit des îlots macroscopiques. L'interprétation de formation des "hut clusters" est reliée à l'existence d'une étape intermédiaire à la formation des îlots macroscopiques. La formation des "hut clusters" permettrait d'accomoder plus vite les atomes arrivant à la surface de l'échantillon qu'une nucléation directe en îlots macroscopiques. Les "huts clusters" se forment plus rapidement et donc préférentiellement au début de la croissance avec une forte densité, qui se traduira par un retard de la nucléation des îlots macroscopiques. Les atomes arrivant sur la surface diffusent ensuite vers les îlots macroscopiques en trouvant un chemin entre les "hut clusters", en partie par adsorption et désorption sur ces îlots métastables.

Cependant, la similarité entre le Ge/Si(001) et Fe/Mo(110) s'arrête certainement à la bimodalité. En effet, d'une part les îlots biseautés Fe/Mo(110) ne disparaissent pas par recuit. D'autre part, le mécanisme de stabilisation des petits îlots compacts ("hut clusters") de Ge (probablement relaxation élastique) ne peut pas être invoqué pour les îlots biseautés, du fait de leur très faible rapport d'aspect vertical ( $\leq 10^{-2}$ ).

Néanmoins, nous pouvons imaginer que les îlots biseautés correspondent à une phase métastable, intermédiaire à la formation des îlots compacts. Aux îlots biseautés correspondrait un mécanisme de relaxation plus rapide que celui qui intervient dans les îlots compacts, entraînant la formation de structures métastables d'épaisseur de l'ordre de  $\approx 1$ nm. Les atomes arrivant à la surface pourraient ensuite diffuser entre les îlots biseautés jusqu'aux îlots compacts. Pour le système Fe/Mo(110), on observe que les îlots biseautés continuent de croître jusqu'à former une couche quasi-continue de 1nm de haut mais avec une vitesse inférieure à celle des îlots compacts.

Cette explication de la croissance simultanée des îlots compacts et des îlots biseautés reste spéculative. Pour tester ces hypothèse il faudra par exemple réaliser des expériences de recuit après la croissance des îlots dans le régime haute température. Par ailleurs, l'origine de la hauteur constante d'environ 1nm sera discutée dans la partie 3.1.4 en regard des résultats obtenus après le recuit de couches de Fe déposées à température modérée.

## 2.7 Bilan sur la croissance d'îlots auto-assemblés de Fe/Mo(110)

Dans ce chapitre nous avons présenté une étude de la croissance épitaxiale de Fe/Mo(110) par DLP pour des températures de dépôt de  $600K \leq T_s \leq 800K$ .

Nous avons tout d'abord étudié dans le régime submonocouche la diffusion de Fe/Mo(110) et déterminé, en appliquant les modèles de cinétique de croissance, une valeur de l'énergie de barrière de diffusion  $E_d \simeq 0.1 \pm 0.1eV$ . Nous avons observé qu'à 300K les cinétiques de croissance de Fe/Mo(110) ou Fe/W(110) sont identiques en utilisant le DLP et la MBE (données de la littérature). Il sera intéressant de poursuivre cette comparaison pour des températures différentes et également d'étudier la cinétique de croissance de Fe/Fe(1HA)/Mo(110) avec les deux techniques.

Après la complétion d'un plan monoatomique pseudomorphe de Fe sur Mo, nous avons mis en évidence la formation simultanée de deux types de nanostructures tridimensionnelles présentant des densités et des modes de croissance différents.

Les îlots les plus denses ( $\approx 1.5 \times 10^{-6}nm^{-2}$ ) sont plats et de rapport d'aspect vertical ( $\frac{h}{w}$ ) très faible ( $10^{-1}$ - $10^{-3}$ ), avec une forme biseautée similaire à celle déjà rapportée dans la littérature pour la croissance de Fe/Mo(110) et Fe/W(110) par MBE [Bethge95, Malzbender98]. Ils ont une hauteur moyenne de  $\simeq 1nm$  et croissent par expansion latérale jusqu'à former une couche quasi-continue pour  $\Theta \simeq 2nm$ .

La deuxième catégorie d'îlots a une croissance 5 fois plus rapide en volume avec une densité de  $\approx 0.25 \times 10^{-6}nm^{-2}$ . Ces nanostructures forment un ensemble d'îlots compacts auto-assemblés sur la surface de Mo(110). Ces îlots présentent une forme compacte, facettée, avec des rapports d'aspect constants  $r = \frac{L}{w} \simeq 1.7$  et  $\eta = \frac{h}{w} \simeq 0.3$ . Les îlots sont terminés par des plans cristallographiques parfaits du Fer bcc. Nous avons démontré par le calcul que leur forme caractéristique et leurs rapports d'aspect correspondent à la forme d'équilibre qui minimise l'énergie de surface/interface d'un îlot de Fe. Leur densité et leurs caractéristiques géométriques varient légèrement avec la température de dépôt probablement du fait de différences de cinétique. Les dimensions des nanostructures peuvent être contrôlées par le biais du taux de couverture avec une faible distribution. La taille des îlots varie de  $1200nm \times 640nm \times 195nm$  pour  $\Theta \simeq 8nm$  à  $275nm \times 200nm \times 35nm$  pour  $\Theta \simeq 0.35nm$ .

L'origine de la croissance simultanée de ces deux catégories de nanostructures a été discutée mais n'est pas encore comprise. Dans ces structures, le fer est presque complètement relaxé avec des déformations résiduelles inférieures à 0.5% selon [001] et 0.2% selon  $[1\bar{1}0]$ . Hors du plan, les déformations n'ont pu être déterminées que pour les îlots compacts qui présentent le paramètre du massif à mieux de 0.03%. Dans le plan, nous mesurons la contribution des deux catégories d'îlots simultanément, qu'il n'a pas été possible de séparer.

## 2.7. BILAN SUR LA CROISSANCE D'ÎLOTS AUTO-ASSEMBLÉS DE FE/MO(110)<sup>89</sup>

La croissance de Fe/Mo(110) permet en définitive la fabrication d'îlots magnétiques épitaxiés auto-assemblés sur Mo(110) dont la structure et la forme sont très bien définis, et sont reproduites sur l'ensemble de l'échantillon avec une relativement faible distribution.



# Chapitre 3

## Croissance de Fe/Mo(110) à température modérée

Quelque soit la température du substrat dans la gamme 300-800K, la croissance de Fe/Mo(110) débute par la complétion d'un plan monoatomique de mouillage (CHAP. 2, partie 1). Par la suite, le résultat de la croissance de Fe diffère suivant la température de dépôt. Comme nous l'avons présenté dans le chapitre précédent, la principale caractéristique de la croissance dans le régime haute température ( $T_s \geq 600K$ ) est l'auto-assemblage d'îlots compacts présentant la forme d'équilibre de cristaux de Fe. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la croissance de Fe/Mo(110) dans le régime de température modérée ( $300K \leq T_s \leq 500K$ ) puis à l'effet d'un recuit à haute température ( $600K \leq T_{rec} \leq 800K$ ), en vue de la fabrication d'assemblées de bandes nanométriques de Fe.

### 3.1 Mise en évidence d'une épaisseur métastable

#### 3.1.1 Dépôt de Fe/Mo(110) à 300K et 400K

A température ambiante, la croissance de Fe/Mo(110) reste quasi-bidimensionnelle après la complétion du premier plan atomique de mouillage comme l'ont montré les études MBE de Tikhov et Maltzbender [Tikhov90, Malzbender98]. Le même mode de croissance a été observé en DLP par O. Fruchart par diffraction RHEED et par AFM [Fruchart98a, Fruchart99a]. Nous complétons les informations déjà obtenues par des images de microscopie STM.

La Figure 3.1 présente des images STM pour différents taux de couverture de la croissance de Fe/Mo(110) à 300K. La vitesse de dépôt est  $0.5\text{\AA}/\text{min}$ . Après la complétion de la couche de mouillage de Fe sur Mo(110), la croissance se poursuit couche par couche jusqu'à la complétion du troisième plan atomique. Il faut souligner la

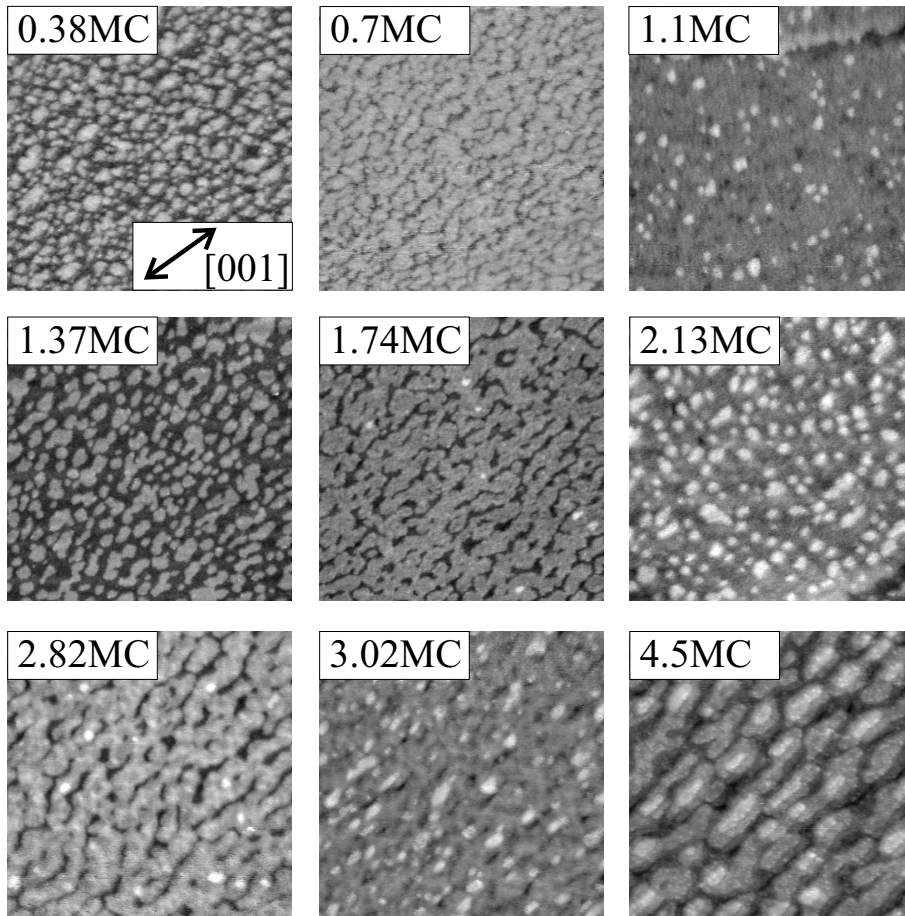


FIG. 3.1 – Images STM (100nm x 100nm) de la croissance de Fe sur Mo(110) à 300K, pour des taux de couverture allant jusqu'à 4.5MC. (obtenues par O. Fruchart)

spécificité du DLP qui tend à favoriser une croissance 2D par rapport à la MBE pour laquelle la croissance couche par couche n'est obtenue que jusqu'à  $\approx 1.5\text{MC}$  [Tikhov90, Malzbender98]. Pour  $\Theta \gtrsim 2.8\text{MC}$  des tertres allongés suivant [001] se forment (Figure 3.1 :4.5MC). La rugosité et la période spatiale des tertres augmentent avec  $\Theta$ . La formation des tertres est d'origine cinétique (barrière Schwoebel) et leur allongement est généralement attribué à un coefficient de collage anisotrope pour les adatoms de Fe sur Fe(110) à cette température [Albrecht93, Fruchart99a].

Nous présentons également sur la Figure 3.2 la croissance des premiers plans atomiques de Fe/Mo(110) à 400K. La croissance couche par couche se poursuit jusqu'au quatrième plan de Fe. La complétion de chaque plan atomique est possible lors d'un dépôt à 400K car les adatoms peuvent diffuser sur une plus grande distance et compléter plus facilement les plans inférieurs. Cette possibilité est cependant

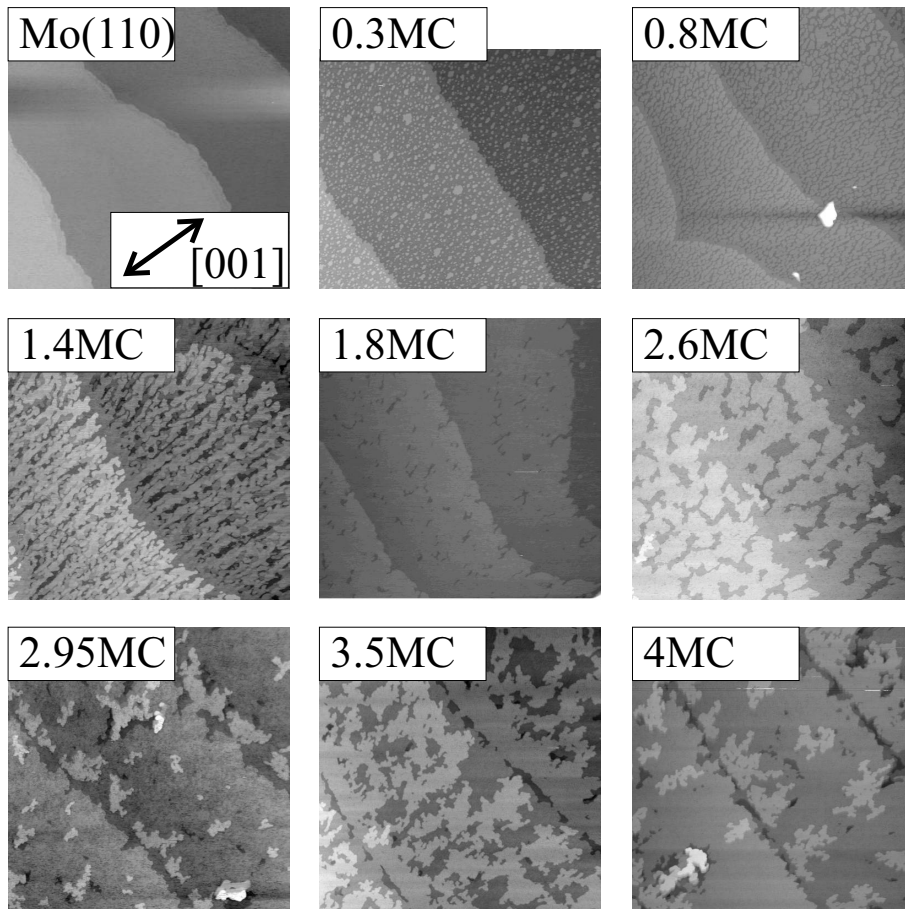


FIG. 3.2 – Images STM (500nm x 500nm) de la croissance de Fe/Mo(110) à 400K, pour différents taux de couverture ( $\Theta < 4MC$ ). La première image correspond à la couche tampon de Mo sans dépôt de Fe.

limitée par le risque d'agglomération des atomes en structures tridimensionnelles. La température limite avant agglomération se situe entre 450K et 500K pour le système Fe/Mo(110) [Tikhov90]. Nous avons effectivement vérifié qu'un dépôt de Fe/Mo(110) à 500K conduit à la formation d'îlots tridimensionnels. La description de la croissance à cette température sera présentée dans la Section 3.3.

Notons le rôle des marches atomiques lors de la croissance de Fe sur Mo(110). Pour  $T_s = 400K$  et  $\Theta \geq 2.95MC$ , on observe des tranchées de profondeur 1 à 2HA alignées au niveau des marches atomiques. La coalescence entre les îlots du 4ème et 5ème plan atomique avec respectivement le 3ème et 4ème plan atomique de la marche supérieure semble donc être retardée. Ce phénomène n'a pas été rapporté dans la littérature. Il pourrait s'expliquer par une différence de relaxation des contraintes pour les structures de 3, 4 et 5HA [Tikhov90, Malzbender98, Hauschild98a]. Au niveau

des marches atomiques, la jonction entre deux plans présentant des déformations différentes serait défavorable car elle nécessiterait de part et d'autre de la marche des déformations élastiques supplémentaires. Le système aurait dès lors tendance à retarder cette coalescence et à favoriser la croissance des îlots monoatomiques sur les terrasses. La formation de trous de 1HA au niveau des marches de Mo est également observée dans des proportions moins importantes pour  $T_s > 600K$ , lors de la formation au niveau des marches d'un deuxième plan de Fe (cf. partie 2.2.1, Figure 2.5). La relaxation des contraintes étant plus efficace à haute température, la différence de déformations du  $n^{\text{ème}}$  plan atomique avec le  $(n - 1)^{\text{ème}}$  plan atomique de la marche supérieure pourrait être significative dès ( $n = 2$ ), entraînant la formation de défauts de remplissage du deuxième plan de Fe sur Mo(110).

### 3.1.2 Effet d'un recuit : mise en évidence d'une épaisseur métastable

La Figure 3.3 présente pour différents taux de couverture compris entre 2MC et 9MC, le résultat du recuit à  $T_{\text{rec}} \geq 600K$  d'un échantillon élaboré à 300K. Le recuit entraîne la réorganisation de la couche de Fe et l'agglomération des atomes en structures plates et allongées pour  $2HA < \Theta < 6HA \simeq 5.7MC$ . Leur forme diffère suivant le taux de couverture mais leur hauteur est constante et correspond à  $4HA$ . Ces structures reposent sur deux plans atomiques de Fe d'après la calibration du taux de couverture avec la balance à quartz. Outre ce mouillage, le système semble donc adapter sa morphologie pour adopter une épaisseur constante de  $6HA$  (au dessus de Mo). En fonction du taux de remplissage  $\frac{\Theta - 2HA}{4HA}$ , on observe d'abord des îlots, puis des bandes allongées qui finissent par percoler et former une couche continue atomiquement plane pour  $\Theta \simeq 6HA$ . Au delà de ce taux de couverture, des îlots compacts de hauteur  $\simeq 6nm$  apparaissent (Figure 3.3-h). La formation de ces îlots se produit au détriment de la couche continue d'épaisseur  $\simeq 1.2nm$  qui se désagrège. Les îlots 3D apparaissent donc comme plus favorables énergétiquement que les portions de couches d'épaisseur  $6HA$ . Nous considérons donc  $6HA$  comme une épaisseur métastable. L'utilisation de températures de recuit différentes, dans la gamme  $T_{\text{rec}} = 600K - 800K$ , n'entraîne pas de modification notable.

Les échantillons élaborés à 400K et recuits suivant la même procédure présentent une reconfiguration qualitativement identique. La hauteur des structures de Fe qui se forment sur les deux plans atomiques de mouillage est cependant étendue à  $6 - 7HA$ . L'épaisseur de métastabilité de la couche de Fe recuite passe donc de  $6HA$  pour  $T_s = 300K$ , à  $8HA$  pour  $T_s = 400K$ .

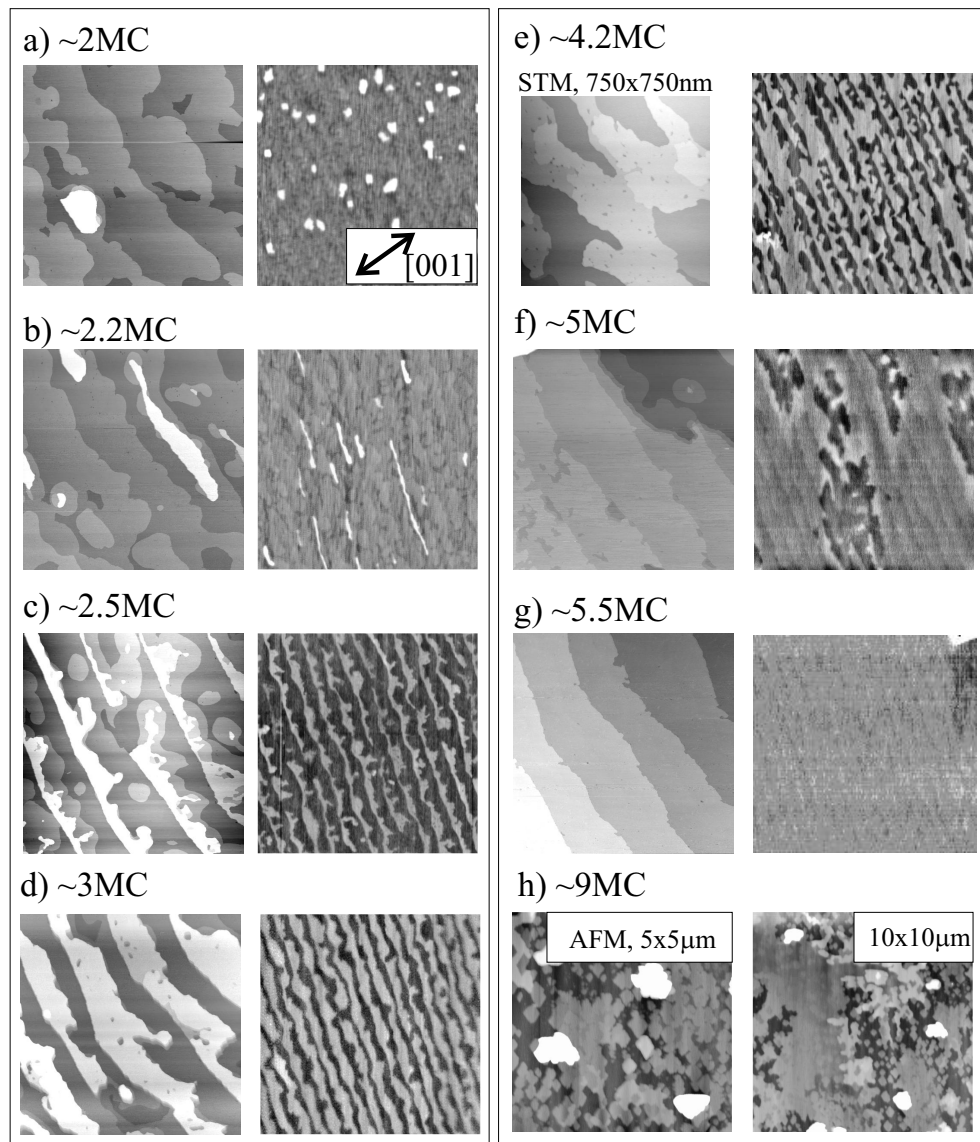


FIG. 3.3 – Images STM et AFM d'un dépôt de Fe à 300K recuit à haute température ( $T_{\text{rec}} \geq 600\text{K}$ ) pour différents taux de couverture. Pour chaque cas, à gauche est présentée une image STM de  $950\text{nm} \times 950\text{nm}$ , et à droite une image AFM de  $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$ , sauf pour (h) où sont présentées deux images AFM.

### 3.1.3 Structure cristallographique de la couche d'épaisseur métastable

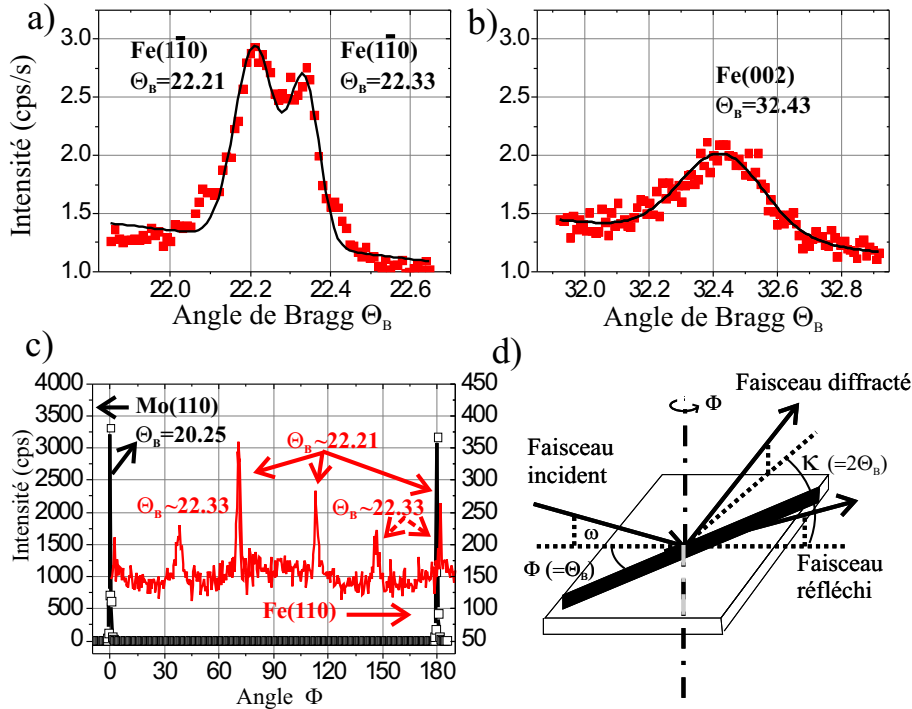


FIG. 3.4 – Spectres de diffraction de rayons X en incidence rasante sur une couche quasi-continue de Fe d'épaisseur  $6HA$  correspondant à  $\Theta \simeq 5MC$  déposée à  $300K$  et recuite à  $600K$ . (a) et (b) correspondent aux spectres de diffraction  $\theta/2\theta$  pour Fe(110) et Fe(002) respectivement. (c) présente le résultat d'un balayage en  $\Phi$  pour  $\theta_{Bragg} = 22.33^\circ$ . Des spectres en géométrie  $\theta/2\theta$  ont ensuite été réalisés pour déterminer les positions de chaque pic, qui ont été reportées sur la figure.

Des mesures de diffraction de rayons X en incidence rasante ont été réalisées pour déterminer les déformations dans ces structures d'épaisseur  $6HA$ . Ces expériences ont été réalisées au Laboratoire de Cristallographie par A. Liénard sur un diffractomètre 4 cercles adapté à la géométrie en incidence rasante. L'échantillon mesuré correspond à une couche de  $\simeq 5MC$  de Fe déposée à  $300K$  et recuite à  $600K$ , dont la morphologie vérifiée en AFM correspond à une couche quasi-continue d'épaisseur  $6HA$ , similaire à la Figure 3.3f.

La Figure 3.4a-b présente les diagrammes de diffraction obtenus pour les plans (110) et (002). On met en évidence que le fer est presque totalement relaxé et présente des paramètres qui s'écartent de moins de 1% de ceux du fer massif. Pour des plans de diffraction (002), une déformation résiduelle de +0.2% est mesurée.

Pour les plans  $(1\bar{1}0)$ , on observe deux pics de diffraction, le premier à  $\theta_B = 22.33^\circ$  correspondant au fer massif et le deuxième à  $\theta_B = 22.21^\circ$  correspondant à une déformation du paramètre de maille du fer de +0.5% par rapport au massif. Compte tenu de l'homogénéité du dépôt de Fe vérifiée par AFM en effectuant des images sur plusieurs zones de l'échantillon, ces deux pics de diffraction ne peuvent pas provenir de la présence de deux types de nanostructures, îlots compacts et couche continue de  $\simeq 1\text{nm}$  par exemple. Pour la couche continue de 6HA il semble donc exister des zones de surface supérieure à la longueur de cohérence des rayons X pour lesquelles le mécanisme de relaxation des contraintes est différent.

Par ailleurs, la Figure 3.4c présente les balayages en  $\Phi$  pour les angles de Bragg correspondant au plans Mo{110} et Fe{110}. Cette procédure permet de vérifier les relations d'épitaxie dans le plan et la présence de macle en faisant tourner l'échantillon sur lui même pour un angle de Bragg fixé. Conformément aux études précédentes sur la croissance de Mo(110) sur  $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$  [Fruchart98d], la couche tampon de Mo(110) ne présente pas de macle. Pour  $\theta_B = 20.25^\circ$ , les pics de diffraction de Mo{110} apparaissent à  $\Phi = 0^\circ$  et  $\Phi = 180^\circ$ . Par contre pour Fe{110} il existe en plus des pics à  $\Phi = 0^\circ$  et  $\Phi = 180^\circ$ , la présence de pics supplémentaires pour  $\Phi = 35.4^\circ$ ,  $\Phi = 68.4^\circ$ ,  $\Phi = 111.5^\circ = 180^\circ - 68.5^\circ$  et  $\Phi = 144.6^\circ = 180^\circ - 35.4^\circ$ . Des spectres en géométrie  $\theta/2\theta$  ont été réalisés pour chaque angle  $\Phi$  pour déterminer l'angle de Bragg correspondant au maximum de diffraction de ces plans. Pour les différents angles  $\Phi$  autres que  $\Phi = 0^\circ$  et  $\Phi = 180^\circ$ , un seul pic de diffraction est observé qui correspond soit à  $\theta_B = 22.33^\circ$ , soit à  $\theta_B = 22.21^\circ$ . L'échantillon présente en définitive des plans avec le paramètre Fe{110} massif pour  $\Phi = 0^\circ$ ,  $\Phi = 180^\circ$ ,  $\Phi = 35.4^\circ$  et  $\Phi = 146.6^\circ$  et des plans distants de +0.5% par rapport au Fe{110} massif pour  $\Phi = 0^\circ$ ,  $\Phi = 180^\circ$ ,  $\Phi = 68.4^\circ$  et  $\Phi = 111.5^\circ$ . La catégorie de pics de diffraction correspondant à  $\theta_B = 22.33^\circ$  est légèrement plus large que pour ceux correspondant à  $\theta_B = 22.21^\circ$ , ce qui indique une longueur de cohérence des structures relaxées plus faible que les structures encore contraintes.

La présence de ces pics de diffraction est surprenante et n'est pas comprise pour l'instant. Il est en effet peu vraisemblable qu'il s'agisse de la formation de macles de Fe/Mo[110]. Nous avons vérifié que la couche tampon de Mo ne présente pas de macle. Fe et Mo ayant la même symétrie cubique centrée les déformations correspondant à l'épitaxie de Fe telle que  $\text{Fe}[1\bar{1}2]//\text{Mo}[001]$  et  $\text{Fe}[\bar{1}12]//\text{Mo}[001]$  seraient considérables. Qui plus est, les directions à  $\Phi = \pm 68^\circ$  par rapport à  $[1\bar{1}0]$  ne correspondent pas à une direction cristallographique de la couche tampon de Mo. Le diagramme de diffraction  $I(\Phi)$  pour les plans {002} aurait pu nous permettre de conclure sur la présence ou non de macle mais cette expérience n'a pas pu être faite car le diffractomètre est alors tombé en panne longue. Des observations similaires ont déjà été rapportées pour le système Fe/Mo(110) par Tikhov et Bauer [Tikhov90]. Ces auteurs mettent en évidence par LEED l'existence d'un cliché de diffraction complexe après le recuit à  $T_{\text{rec}} > 820\text{K}$  d'une couche déposée à 300K. Il existe

trois orientations différentes pour Fe(110), Fe[001]//Mo[001], Fe[1 $\bar{1}$ 2]//Mo[001] et Fe[ $\bar{1}$ 12]//Mo[001]. La présence de ces pics de diffraction était alors attribuée à la formation d'un alliage à l'interface entre Fe et Mo. Dans le cas présent, la température de recuit est seulement de 600K, aussi la formation d'un alliage semble peu probable. Ceci semble confirmé par le fait que seule la relation d'épitaxie Fe[001]//Mo[001] a été mise en évidence pour les couches déposées à plus haute température (700K) (cf. Figure 2.15). Enfin, le fait de retrouver des pics de diffraction avec un paramètre de Fe distant du paramètre massif de moins de 0.5%, nous permet d'éliminer aussi une éventuelle oxydation de la couche métastable de Fe.

Il apparaît en définitive que les phénomènes de relaxation qui interviennent lors du recuit d'une couche de Fe/Mo(110) déposée à température modérée sont complexes. Leur compréhension nécessitera une étude plus approfondie des déformations, qui n'a malheureusement pas été possible dans le cadre de cette thèse.

### 3.1.4 Discussion sur l'origine de l'épaisseur métastable de Fe/Mo(110)

Pour un système présentant un fort désaccord de paramètre de maille comme le système Fe/Mo(110) ( $f = -8.9\%$ ), la relaxation des contraintes élastiques se fait par l'introduction d'un réseau de dislocations. L'énergie associée au réseau de dislocations est proportionnelle à son étendue; la croissance d'îlots tridimensionnels est donc favorable comme nous l'avons vu au CHAP. 2. La croissance 2D de Fe/Mo(110) est cependant obtenue à température modérée (300K et 400K) du fait de limitations cinétiques. L'introduction de dislocations pour  $\Theta \approx 1.5MC$  ne permet de réduire que partiellement les contraintes élastiques. Pour  $\Theta \simeq 5MC$ , Tikhov et Bauer rapportent des paramètres de maille de Fe de +1.4% et +1.2% suivant [1 $\bar{1}$ 0] et [001] respectivement [Tikhov90]. Lors d'un recuit, le système est donc susceptible d'évoluer vers une configuration plus stable.

La réorganisation de la morphologie que nous avons observée après le recuit d'une couche continue déposée à température modérée est donc compréhensible. Cette tendance à former des nanostructures 3D lors d'un recuit a d'ailleurs déjà été rapportée pour les systèmes Fe/Mo(110) [Tikhov90] et Fe/W(110) [Sander98b]. Cependant, on attendrait d'un point de vue énergétique des îlots présentant une forme compacte telle que celle que nous avons décrite dans le CHAP. 2. A la place, nous observons la formation de structures de hauteur constante et de rapport d'aspect vertical  $h/L \approx h/w$  supérieur à 100, qui augmente avec le taux de couverture. En particulier, pour  $\Theta = 6HA$ , la procédure de recuit résulte en la formation d'une couche continue atomiquement plane. Ce mode de croissance est comparable avec

celui des îlots biseautés, observé lors de la croissance de Fe/Mo(110) à haute température ( $600 \leq T_s \leq 800K$ ). Les îlots biseautés présentent également une épaisseur constante de l'ordre de 1nm et une croissance par expansion latérale jusqu'à former une couche quasi-continue pour des taux de couverture importants ( $\Theta > 2\text{nm}$ ). Il est donc raisonnable de rapprocher ces deux types de structures. La morphologie très différente des bandes de Fe et des îlots biseautés pourrait provenir des conditions de formation différentes.

Les modifications de morphologie qui ont lieu pendant le recuit à haute température sont certainement reliées à un mécanisme de relaxation des contraintes. L'épaisseur métastable observée doit alors correspondre à une hauteur critique pour laquelle les contraintes sont le plus efficacement relaxées, compte tenu du réseau de dislocations qui peut être introduit à l'interface. On note cependant que pour une épaisseur supérieure à 6-8HA déposée à 300K, le recuit entraîne la formation d'îlots compacts au dépend de la couche continue de 6-8HA qui se désagrège. On peut envisager qu'un nouveau type de réseau de dislocations puisse alors être introduit dans les îlots compacts. Compte tenu des faibles déformations résiduelles, cette transition pourrait correspondre au passage d'un réseau commensurable de dislocations à un réseau de dislocations incommensurable, favorisé pour les épaisseurs supérieures à 6-8HA, et permettant une relaxation complète des contraintes élastiques. Pour autant cette approche n'explique pas l'inhibition de la croissance des îlots biseautés au delà de 6HA. Il est surprenant en effet de constater au cours de la croissance des îlots biseautés ou de la formation des bandes de Fe qu'il soit plus favorable d'étendre la surface sur laquelle se développent des dislocations plutôt que d'augmenter la hauteur des nanostructures, ce qui permettrait de réduire l'énergie des dislocations. La raison pourrait venir de limitations cinétiques, mais nous avons observé que le résultat du recuit est indépendant de la température de recuit. Même si les températures de recuit utilisées sont limitées dans la gamme  $600K \leq T_{\text{rec}} \leq 800K$ , on s'attendrait à observer une différence d'épaisseur de stabilité.

Les mécanismes de relaxation qui imposent pour le système Fe/Mo(110) l'existence de cette épaisseur de métastabilité, qui apparaît à la fois pour une croissance ou un recuit à température élevée, ne sont donc pas encore compris. Il sera nécessaire d'étudier plus systématiquement les contraintes avant et après recuit pour différents taux de couverture pour mieux comprendre ce mécanisme de relaxation.

Par ailleurs, les premiers résultats de diffraction de rayons X, en regard des observations de Tikhov et Bauer par LEED, Auger et TDS [Tikhov90] suggèrent la formation d'un alliage d'interface Fe-Mo. Serait-il possible que les îlots biseautés et les bandes de Fe correspondent à la formation de cet alliage? Les paramètres de Fe déterminés par diffraction de rayons X diffèrent des paramètres du fer massif de moins de 0.5%. Par conséquent, s'il existe un alliage, il doit être présent uni-

quement à l'interface, et ne permettrait pas d'expliquer l'épaisseur métastable. Il faut noter également, que Tikhov et Bauer n'ont observé l'apparition d'un alliage que pour une température de recuit  $\geq 820\text{K}$ , alors que le recuit que nous avons effectué pour obtenir les structures de 6HA d'épaisseur étudiées aux rayons X, était seulement de 600K. Enfin, si un recuit à 650K d'une couche déposée à température ambiante entraîne la formation d'un alliage d'interface et de domaines tournés de  $\pm 35^\circ$ , le même phénomène devrait avoir lieu lors d'une croissance à 700K ou 800K. On devrait alors observer des domaines d'orientation des îlots compacts dont l'orientation suivant [001] est imposée par la forme d'équilibre du cristal de Fe. Sur tout l'ensemble des échantillons que nous avons observé, cela n'a jamais été le cas. Bien qu'on ne puisse pas l'écarter totalement, l'hypothèse de la formation d'un alliage d'interface nous paraît peu probable.

## 3.2 Bandes de Fer auto-organisés sur Mo(110)

### 3.2.1 Nucléation des bandes de Fe sur les marches de Mo

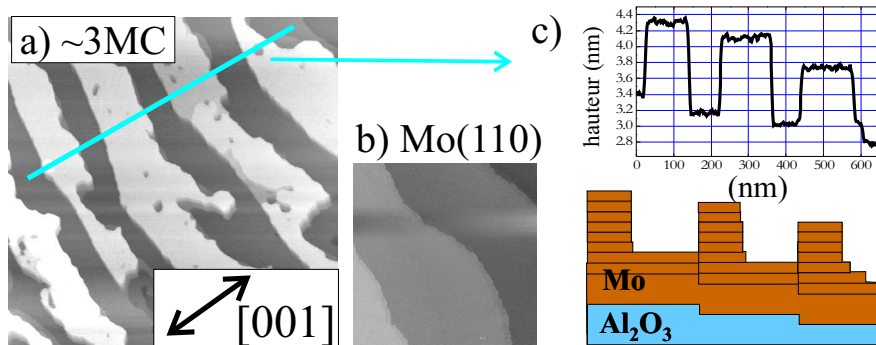


FIG. 3.5 – (a) Image STM ( $950\text{nm} \times 950\text{nm}$ ) de  $\approx 3\text{MC}$  de Fe déposé à 400K et recuit pendant 1h à 700K. (b) Image STM de la surface de Mo(110) avant le dépôt de Fe (même échelle). (c) Section suivant le trait indiqué sur la figure-a avec un schéma présentant la morphologie de l'échantillon après recuit.

Nous venons de montrer que lors d'un recuit à haute température, la couche 2D de Fe obtenue par un dépôt à 300K (400K) évolue pour un taux de couverture compris entre 2HA et 6HA (respectivement 2HA et 8HA) de manière à ne présenter que des nanostructures d'égale hauteur. En fonction du taux de couverture, les structures obtenues présentent différentes morphologies. Dans la gamme de taux de couverture  $2.2\text{MC} \leq \Theta \leq 4.5\text{MC}$  il se forme en particulier des bandes nanométriques de Fe. Les

images AFM de la Figure 3.3b-e montrent qu'elles sont parallèles et régulièrement espacées. Cette organisation est reliée à la présence de marches atomiques sur le substrat. La Figure 3.5 présente une image STM d'un dépôt à 400K de 3MC de Fe, recuit à 700K. Les bandes de Fe sont exactement parallèles à la direction des marches observées sur la surface nue de Mo(110) et présentent la même périodicité. A partir d'observations STM sur des bandes de Fe en cours de constitution, on met en évidence que les îlots sont situés sur le bord inférieur des marches atomiques. Ceci est confirmé par l'existence d'un côté droit et un côté rugueux des bandes, le côté de l'îlot qui se trouve en bord de marche étant le plus rectiligne puisqu'il reproduit en fait la régularité des marches du substrat. Les structures de  $4HA$  se collent donc préférentiellement sur le bord inférieur des marches, qui constitue un site privilégié pour la nucléation des îlots. Cette tendance des îlots de Fe à coller le bord inférieur des marches a également été observée lors d'un recuit par Hauschild sur le système Fe/W(110) pour des îlots de  $3 - 5HA$  [Hauschild98a].

### 3.2.2 Contrôle des paramètres des bandes de Fe auto-organisées

Cette procédure de dépôt à température modérée suivie d'un recuit à haute température se révèle être une méthode très intéressante pour fabriquer des nanostructures 1D auto-organisées. Le réseau de marches de Mo sert de gabarit pour l'organisation des bandes de Fe. Les techniques habituelles d'auto-organisation par décoration d'atomes en bord de marche utilisent un régime de flux de marche et la hauteur des structures se limite à 1 voire 2HA [Elmers94, Hauschild98c]. Notre procédure donne la possibilité de réaliser des nanostructures de 6 à 8 plans atomiques. Nous présentons dans cette section comment peuvent être contrôlés les paramètres des bandes de Fe.

#### ► contrôle de l'orientation et de la distance entre bandes

Comme nous l'avons présenté dans la section 1.6, l'orientation et l'espacement des marches atomiques de la surface de Mo(110) dépend de la désorientation de coupe du substrat de saphir par rapport à la surface d'épitaxie  $(11\bar{2}0)$ . La direction et l'espacement des bandes de Fe qui s'ancrent sur les marches de Mo peuvent donc être contrôlés par le choix du substrat. La Figure 3.6 présente pour illustration la fabrication de bandes de Fe avec trois orientations et espacements différents.

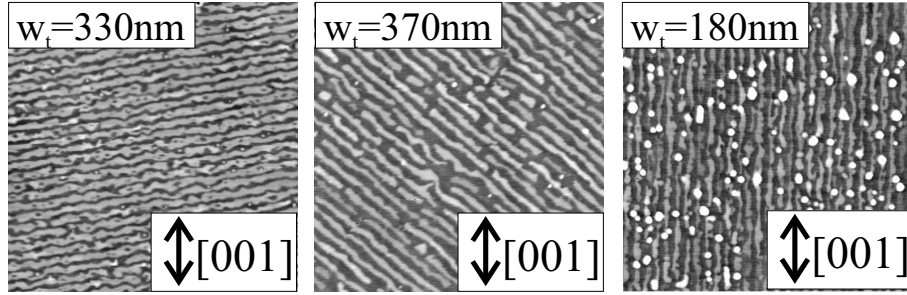


FIG. 3.6 – Images AFM  $10^4\text{nm} \times 10^4\text{nm}$  de bandes de Fe présentant des orientations et des espacements différents après un dépôt sur des substrats de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  de désorientations de coupe différentes. L'espacement des marches,  $w_t$ , est donné sur chaque figure. Sur l'image de droite, les îlots observés en plus des bandes de Fe sont dus à un re-dépôt de  $0.25\text{MC}$  de Fe à  $700\text{K}$ , après une première étape de dépôt à  $400\text{K}$  et recuit à  $700\text{K}$  ( $\Theta \simeq 3\text{MC}$ ).

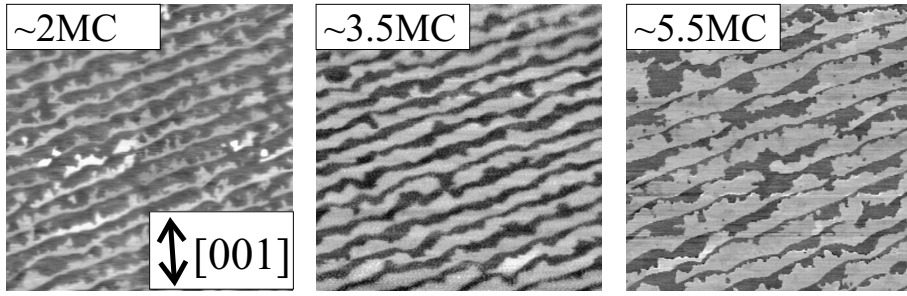


FIG. 3.7 – Images AFM  $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$  de bandes de Fe avec des largeurs différentes dépendant du taux de couverture ( $T_s = 400\text{K}$ ,  $T_{\text{rec}} = 700\text{K}$ ).

### ► contrôle de la largeur des nanostructures

La surface occupée par les bandes de fer est directement liée à la quantité de matière déposée puisque la hauteur des bandes est un paramètre fixé par l'épaisseur de métastabilité  $e_{\text{met}}$ . En fonction de la largeur des terrasses  $w_{\text{terrasses}}$ , la largeur des bandes  $w_{\text{bandes}}$  est par conséquent contrôlée avec le taux de couverture  $\Theta$ . Théoriquement, la largeur des bandes suit la relation  $w_{\text{bandes}} = w_{\text{terrasses}}(\Theta - 2HA)/e_{\text{met}}$ . Pratiquement, il faut tenir compte des irrégularités des bandes de Fe, en particulier du côté non délimité par la marche du substrat. Ainsi pour des taux de couverture trop proche de  $\Theta = e_{\text{met}}$ , on observe la percolation des bandes de Fe. La Figure 3.7 présente des images AFM pour différents taux de couverture d'un échantillon déposé à  $T_s = 400\text{K}$  et recuit à  $T_{\text{rec}} = 700\text{K}$ .

► **contrôle de la hauteur**

Pour des conditions de dépôt fixées, nous avons vu que la hauteur des nanostructures est une constante qui correspond à l'épaisseur métastable  $e_{\text{met}}$ , qui est attribuée à un effet de relaxation des contraintes. La manipulation de la hauteur des bandes de Fe est difficilement réalisable. L'utilisation de différentes températures de recuit dans la gamme  $600\text{K} < T_{\text{rec}} < 800\text{K}$  s'est avérée sans influence sur  $e_{\text{met}}$ . Néanmoins, nous avons observé que celle-ci peut être très faiblement augmentée si le dépôt initial est réalisé à 400K plutôt qu'à 300K. La hauteur des bandes atteint  $\simeq 1\text{nm}$  pour  $T_s = 300\text{K}$  et  $T_{\text{rec}} = 700\text{K}$ , et  $\simeq 1.5\text{nm}$  pour  $T_s = 400\text{K}$  et  $T_{\text{rec}} = 700\text{K}$ . Cette tendance ne peut cependant pas être appliquée à de plus hautes températures car le mode de croissance initial est alors modifié comme nous le verrons dans la section suivante.

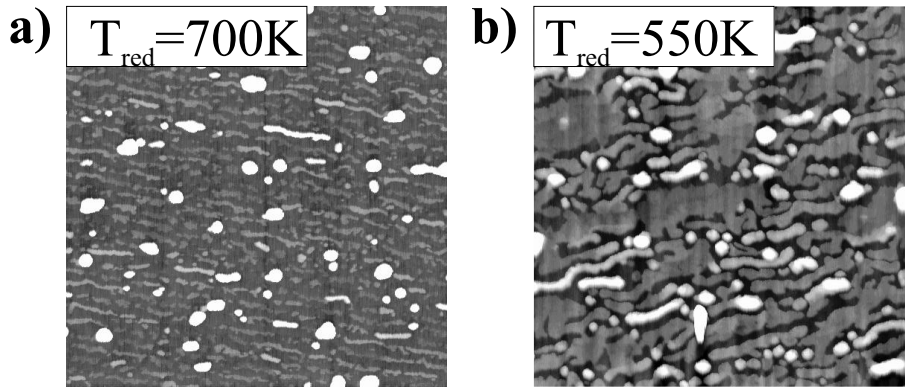


FIG. 3.8 – Images AFM  $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$  présentant l'effet d'un re-dépôt à 700K (a) et à 550K (b), après une première étape de formation de bandes de Fe ( $T_s = 400\text{K}$  et  $T_{\text{rec}} = 700\text{K}$ ).

Nous avons recherché à accroître la hauteur des bandes en effectuant des re-dépôts à différentes températures sur les bandes de Fe auto-organisées obtenues après la première étape de dépôt et recuit. L'objectif était de se servir de cette première étape comme gabarit pour la suite de la croissance. Cette approche n'a pas été concluante, comme le montre la Figure 3.8. Si le re-dépôt est effectué à haute température ( $T_{\text{red}} > 600\text{K}$ ), des îlots compacts nucléent par dessus les bandes de Fe indépendamment du premier dépôt (Figure 3.8a). Si le re-dépôt est effectué à température modérée ( $T_{\text{red}} \leq 550\text{K}$ ), on observe le remplissage des vallées entre les bandes de Fe vers la complétion d'une couche continue d'environ 1nm d'épaisseur (Figure 3.8b).

### 3.3 Croissance à 500K

Nous avons vu que, par l'intermédiaire du recuit à haute température d'une couche de Fe déposée à 300K ou 400K, il est possible de fabriquer des bandes de Fe auto-organisées sur Mo(110). Leur hauteur est cependant limitée à 1.5nm. Dans cette partie, nous nous intéressons à la croissance de Fe/Mo(110) à 500K. Bien que présentant un mode de croissance très différent, elle conduit également à la formation de nanostructures allongées le long des marches de Mo, mais dont la hauteur peut atteindre 5nm.

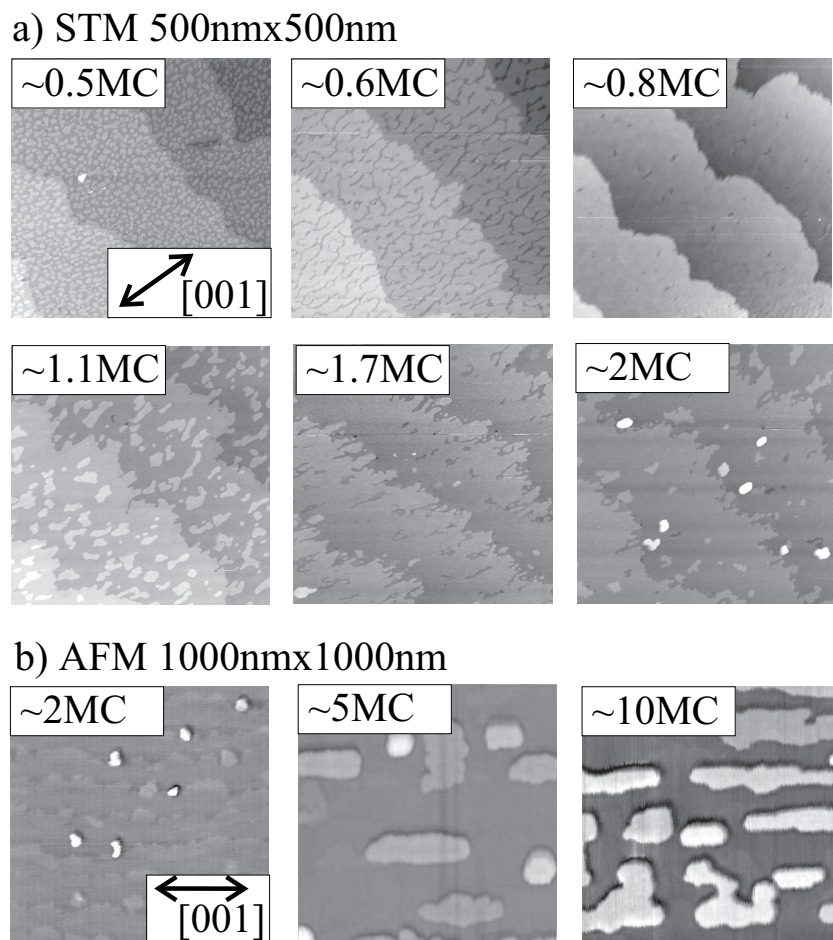


FIG. 3.9 – (a) Images STM (500nm $\times$ 500nm) présentant les premiers stades de la croissance de Fe sur Mo(110) à 500K, et (b) images AFM (1000nm $\times$ 1000nm) présentant la suite du dépôt au delà de  $\Theta > 2MC$ .

La Figure 3.9 présente différents stades d'un dépôt de Fe/Mo(110) à 500K. Après la complétion du premier plan atomique, la croissance couche par couche se poursuit

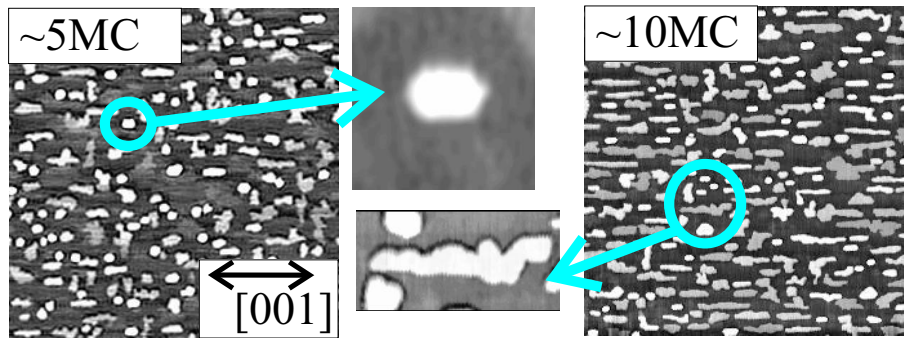


FIG. 3.10 – Images AFM 5000nm $\times$ 5000nm d'un dépôt de Fe/Mo(110) à 500K pour  $\Theta = 5\text{MC}$  et  $\Theta = 10\text{MC}$ . Au centre, zoom sur un îlot compact facetté de taille 160nm  $\times$  100nm  $\times$  9nm, et sur un îlot plat allongé de taille 740nm  $\times$  130nm  $\times$  5nm. L'îlot plat est allongé le long des marches de Mo, ici parallèles à [001], et présente un bord assez rectiligne qui pourrait correspondre à la position de la marche.

jusqu'à terminer le deuxième plan de Fe. On observe alors la nucléation d'îlots tridimensionnels. A 500K, le mode de croissance est donc de type Stranski-Krastanov avec deux couches de mouillage de Fe sur Mo(110). Ces observations sont en accord avec les mesures Auger de Tikhov et Bauer qui indiquent dans le cas MBE la fin de la croissance 2D pour  $\Theta = 1.8\text{MC}$  à 500K [Tikhov90]. Les îlots qui se développent par la suite ont des caractéristiques très différentes de celles des îlots obtenus dans le régime haute température ( $T_s > 600\text{K}$ ). Les Figures 3.9b et 3.10a présentent des images AFM des îlots correspondant à  $\Theta = 5\text{MC}$ . Par rapport à un dépôt à 700K, la densité des îlots est augmentée d'un facteur 50 et la surface occupée par les îlots correspond à 25% de la surface totale, par rapport à 5% à 700K. Comme on peut le voir sur la Figure 3.10, il se forme quelques îlots 3D compacts facettés ayant pour dimensions typiques 170nm  $\times$  120nm  $\times$  10nm mais ces derniers ne représentent qu'une faible proportion du volume de Fe déposé (agrandissement central supérieur). La plus grande partie des îlots ont une hauteur de 3 à 4nm, une largeur moyenne de  $w \simeq 140\text{nm}$  et sont tous allongés parallèlement aux marches. Pour des taux de couverture croissants, la longueur des îlots est notablement augmentée alors que la largeur et la hauteur ne varient pratiquement pas. Pour  $\Theta \simeq 10\text{MC}$  (Figure 3.9b et 3.10b), il se forme une assemblée d'îlots allongés dans la même direction dont le rapport d'aspect latéral  $\frac{L}{w}$  est en moyenne de 5 et dont la hauteur est 5nm. Nous n'avons pas réalisé d'échantillons pour des taux de couverture supérieurs à 10MC mais on peut s'attendre à ce que les îlots finissent par coalescer et forme une couche quasi-continue de Fe.

La Figure 3.11 montre les clichés de diffraction RHEED obtenus sur un tel échantillon avec un taux de couverture de 10MC (Figure 3.10b). On distingue à nouveau trois catégories de raies. La première correspond à des raies perpendiculaires à la

surface de l'échantillon avec le paramètre de maille de Mo. Elles sont associées à la couche pseudomorphe de mouillage présente entre les îlots. La deuxième catégorie de raies est également perpendiculaire à la surface de l'échantillon avec un paramètre proche de celui de Fe massif. Ces lignes proviennent de la diffraction des électrons sur le sommet des îlots. La détermination des paramètres de maille montrent une déformation par rapport au massif de  $+2.6\% \pm 1\%$  suivant  $[001]$  et  $+1\% \pm 1\%$  suivant  $[1\bar{1}0]$ . La relaxation du fer n'est donc pas complète dans la direction  $[001]$  à 500K, en accord avec les mesures par LEED de Tikhov et Bauer [Tikhov90]. Suivant les azimuts  $[001]$  et  $[1\bar{1}0]$ , les clichés de diffraction RHEED présentent également des raies inclinées qui indiquent la présence de facettes de type  $\{310\}$  et  $\{111\}$  respectivement.

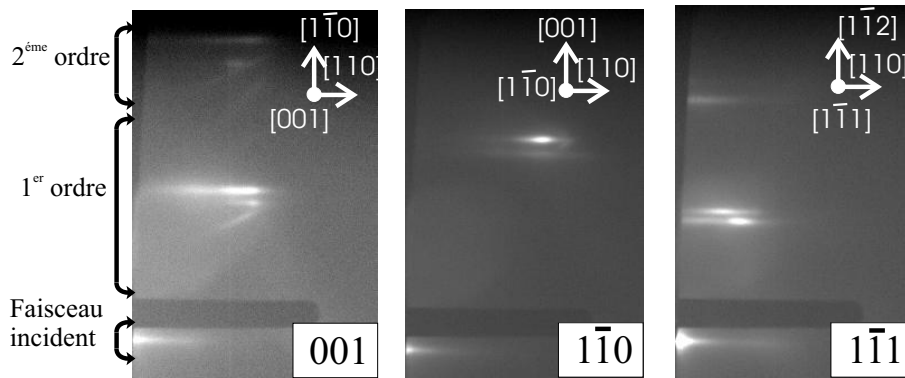


FIG. 3.11 – Clichés de diffraction RHEED pour dépôt  $\Theta = 10\text{MC}$  à 500K suivant les trois azimuts  $[001]$ ,  $[1\bar{1}0]$  et  $[1\bar{1}1]$ . Les clichés sont décalés de quelques degrés par rapport à l'angle azimutal pour mettre en évidence les différentes catégories de raies.

La croissance à 500K se présente donc comme un cas intermédiaire entre le régime température modérée présenté au début de ce chapitre et le régime haute température décrit au CHAP. 2. L'énergie fournie au système est suffisante pour que puisse se développer un mode Stranski-Krastanov à la place du mode pseudo-Frank-Van der Merwe observé à 300K et 400K. Cependant, la température reste faible et la croissance est soumise à des limitations cinétiques qui n'ont pas lieu pour  $T_s \geq 600\text{K}$ . La diffusion de surface est ainsi moins performante à 500K qu'à haute température. La première conséquence est une densité d'îlots plus importante. La deuxième conséquence est une dépendance de la diffusion de surface vis à vis des marches atomiques. Alors qu'à 700K les adatoms diffusent librement sur la surface, à 500K la probabilité de pouvoir passer les marches atomique est fortement diminuée ce qui entraîne la formation d'îlots entre les marches de Mo. Le même type de limitation peut s'appliquer à la diffusion sur les îlots de Fe pour passer d'un plan atomique à un plan supérieur, et donc expliquer la faible hauteur des îlots et sa faible variation avec le taux de couverture. Le rôle limitant des marches atomiques vis à vis de la

diffusion a été étudié par Reuter et al. pour les systèmes Co, Ni, Fe sur W(110) [Reuter98]. Dans leurs expériences, les auteurs observent une compétition entre une anisotropie de diffusion déterminée par la structure cristalline et une anisotropie de diffusion liée aux marches du substrat. Ce dernier type d'anisotropie de diffusion est dominant en dessous d'une température limite : 820K pour Co/W(110) et Ni/W(110). Pour la diffusion de Fe sur W(110) ils ne notent aucune dépendance avec l'orientation des marches dans la gamme de température 720K-1070K. De la même façon, nous n'avons pas observé de dépendance de la croissance de Fe/Mo(110) par rapport à l'orientation des marches de Mo pour  $600K < T_s < 800K$ . Nous montrons ici que la température pour laquelle la diffusion de Fe devient sensible à l'orientation des marches est comprise entre 500K et 600K.

► Effet d'un recuit

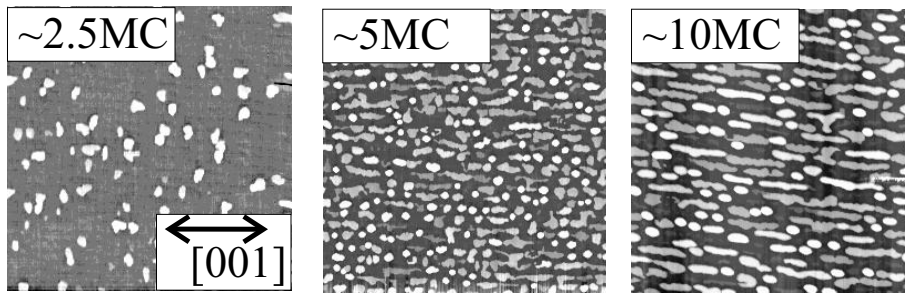


FIG. 3.12 – Images AFM ( $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$ ) d'un dépôt de Fe/Mo(110) à 500K pour  $\Theta = 2.5\text{MC}$ ,  $\Theta = 5\text{MC}$  et  $\Theta = 10\text{MC}$  recuit à 700K pendant 1 heure. Les îlots sont allongés le long des marches de Mo qui sont ici environ parallèles à [001].

Comme pour les échantillons élaborés à 300K et à 400K, nous avons considéré l'effet d'un recuit à 700K sur les échantillons de Fe/Mo(110) déposés à 500K. Comme le montre la Figure 3.12, le recuit n'entraîne pas de modifications morphologiques importantes. La proportion d'îlots compacts et d'îlots allongés est conservée. On note simplement une amélioration de la régularité dans la forme des îlots et le fait qu'ils sont moins facettés. Les mesures de diffraction RHEED mettent en évidence que les îlots de Fe sont à présent relaxés à mieux que 1% des paramètres du Fer massif. Le recuit à 700K permet donc la relaxation des contraintes élastiques stockées dans les îlots, vraisemblablement par une reconfiguration du réseau de dislocations à la base des îlots.

### 3.4 Bilan de la croissance de nanostructures allongées de Fe/Mo(110)

A température modérée, la croissance de Fe sur Mo(110) diffère de la croissance à haute température du fait de limitations cinétiques. A 300K ou à 400K, ces limitations cinétiques permettent d'obtenir des couches continues de Fe. Un recuit à haute température ( $T_{\text{rec}} > 600\text{K}$ ) entraîne de fortes modifications structurales qui permettent la relaxation des contraintes résiduelles. Nous avons mis en évidence pour le système Fe/Mo(110) qu'il existe une épaisseur métastable  $e_{\text{met}}$ , telle que pour des taux de couverture  $2HA < \Theta < e_{\text{met}}$ , il ne se forme que des structures présentant cette épaisseur. Son origine est attribuée à une réduction optimum des contraintes élastiques, même si le rôle d'un alliage à l'interface ne peut pas être complètement écarté. Nous avons constaté que  $e_{\text{met}}$  ne dépend pas de la température de recuit, mais de la température de dépôt avant recuit  $T_s$  : elle passe de 6MC pour un dépôt avant recuit à  $T_s = 300\text{K}$  à 8MC pour  $T_s = 400\text{K}$ . Il existe une gamme de taux de couverture pour laquelle le recuit induit la formation de bandes de Fe disjointes, alignées le long des marches, sur une couche continue de 2HA. Nous avons montré que cette méthode permet de fabriquer des bandes auto-organisées de Fe de 1.2nm à 1.5nm de hauteur et dont l'orientation, l'espacement, la largeur peuvent être contrôlés à partir de la désorientation du substrat de saphir et du taux de couverture de Fe.

Un dépôt à 500K permet également d'obtenir des nanostructures de Fe allongées sur une couche de 2HA de mouillage. Ce mode de croissance est obtenu du fait de limitations cinétiques pour la diffusion du fer au passage des marches atomiques, qui conduisent à la formation d'îlots plats allongés le long des marches de Mo(110). Ces structures ont une forme moins régulière que par la méthode de dépôt à 300K ou 400K suivi d'un recuit, mais elles ont l'avantage de présenter une hauteur plus importante, de 5nm.

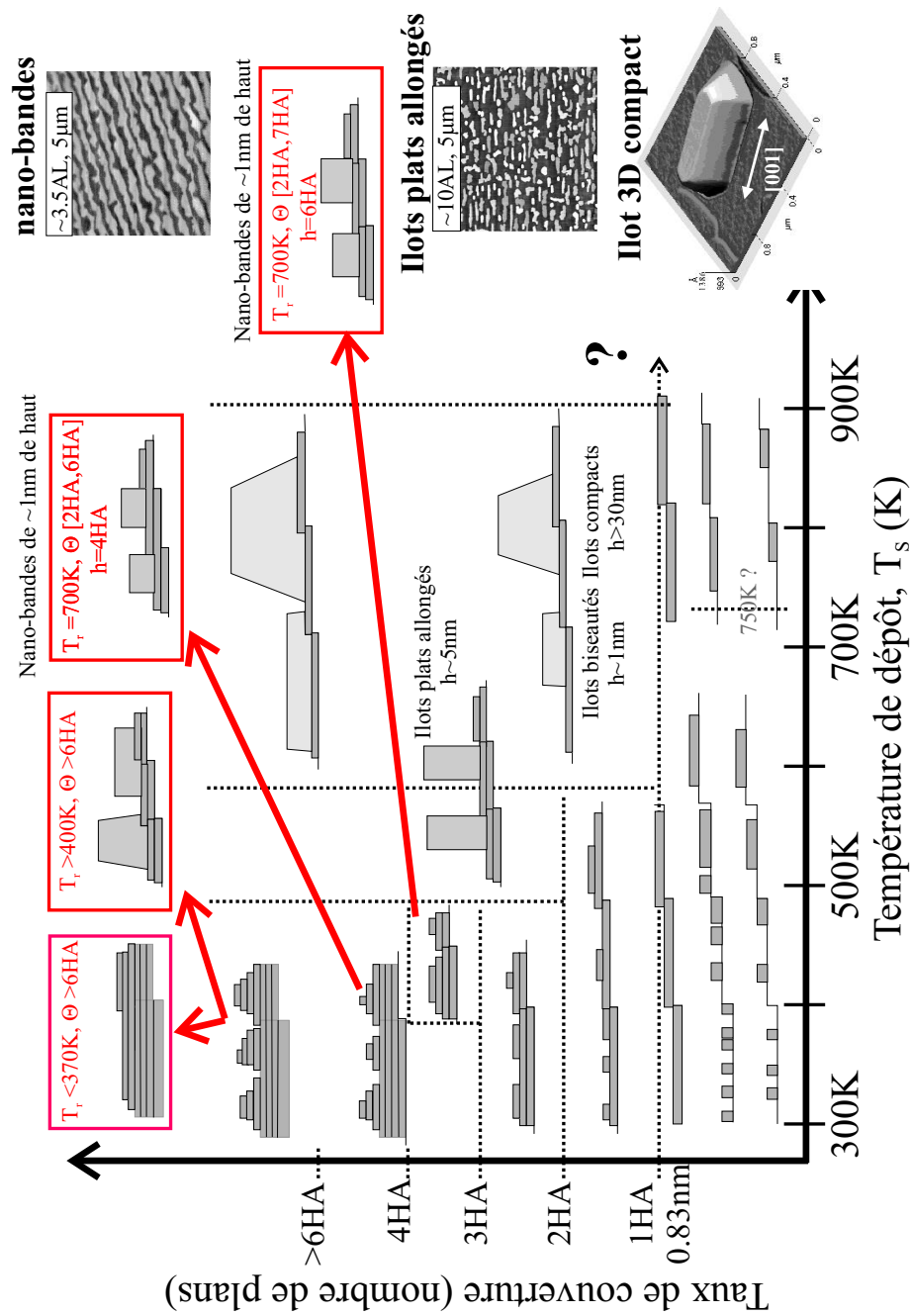


FIG. 3.13 – Schéma récapitulatif des modes de croissance de Fe/Mo(110).



## Deuxième partie

# PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES NANOSTRUCTURES DE Fe/Mo(110)



# Chapitre 4

## Propriétés magnétiques de nanoparticules : introduction

### 4.1 Le magnétisme des systèmes de dimensions réduites

#### 4.1.1 Différents types d'énergies magnétiques

A l'échelle macroscopique, le magnétisme est dominé par les domaines et les parois de domaines. Le renversement de l'aimantation se réalise par des processus de nucléation, propagation, annihilation de parois. L'origine des domaines magnétiques repose sur la compétition entre les différents termes de l'énergie magnétique : l'énergie d'échange, l'énergie d'anisotropie (magnétocristalline, surface/interface, ...), l'énergie Zeeman ou de champ appliqué, et l'énergie magnétostatique ou énergie dipolaire.

► **L'énergie d'échange,  $E_{\text{ech}}$  :**

D'origine quantique, l'énergie d'échange est de nature électrostatique. Elle est très intense mais n'agit qu'entre moments proches voisins et s'atténue très vite avec la distance. Dans les systèmes ferromagnétiques, elle tend à aligner les moments parallèlement les uns aux autres et favorise donc une aimantation uniforme. La densité d'énergie d'échange  $E_{\text{ech}}$  peut s'écrire  $E_{\text{ech}} = A_{\text{ech}}(\sum_{i,j} \left(\frac{\partial M_i}{\partial x_j}\right)^2)$ , où  $A_{\text{ech}}$  est la constante d'échange du matériau considéré (pour Fe,  $A_{\text{ech}} \simeq 2 \times 10^{-11} \text{J/m}$ ). Cette expression exprime la densité d'énergie que coûte au système une déviation de la distribution d'orientation des moments par rapport à une orientation uniforme.

► **L'énergie d'anisotropie,  $E_a$  :**

L'énergie d'un matériau ferromagnétique dépend aussi de la direction de l'aimantation  $\vec{M}$  par rapport aux axes cristallographiques du matériau. Cette dépendance, qui résulte d'interactions spin-orbite, décrit une énergie d'anisotropie.

Cette énergie peut prendre plusieurs formes : L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline correspond à celle du matériau massif (i.e. infini avec un paramètre de maille relaxé). Elle est reliée à la symétrie du cristal. Dans le cas d'un cristal cubique comme le fer, la densité d'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline est exprimée par  $E_{mc} = K_1\alpha + K_2\beta + K_3\alpha^2 + \dots$  avec  $\alpha = a_1^2a_2^2 + a_2^2a_3^2 + a_3^2a_1^2$ ,  $\beta = a_1^2a_2^2a_3^2$ , avec  $a_i$  les cosinus directeurs de  $\vec{M}$  suivant les axes du cube, et avec  $K_1$ ,  $K_2$  et  $K_3$  les coefficients d'anisotropie caractéristiques du matériau. En général,  $K_2$  et  $K_3$  sont faibles par rapport à  $K_1$  et peuvent être négligés. Pour le fer,  $K_1 \simeq 4.8 \times 10^4 \text{J/m}^3$ ,  $K_2 \approx 2 \times 10^2 \text{J/m}^3$  et  $K_3 < 2 \times 10^2 \text{J/m}^3$  [Escudier73]. Toute déviation à cette situation idéale introduit des termes correctifs. Ces termes correctifs peuvent résulter de déformations élastiques du cristal : on considère alors l'anisotropie magnétoélastique. L'énergie d'anisotropie magnétoélastique n'est donc rien d'autre que la différentielle de l'énergie magnéto-cristalline par rapport à la déformation. On peut noter que pendant longtemps, on pensait que l'énergie magnéto-cristalline était linéaire avec la déformation. Récemment, des mesures d'anisotropie réalisées sur des couches minces ont montré un comportement fortement non linéaire [Sander99]. Une autre déviation à la situation idéale du matériau massif est la présence d'interfaces qui correspond à une brisure de symétrie du fait de la taille finie. On est amené à introduire des termes d'énergie d'anisotropie de surface, de marches qui s'expriment en fonction de la symétrie du cristal et de l'interface.

Pratiquement, l'ensemble de ces contributions microscopiques peut être regroupé en un seul terme d'énergie d'anisotropie  $E_a$  caractérisé par des coefficients d'anisotropie effectifs  $\kappa_1$ ,  $\kappa_2$ , ... qui englobent l'ensemble des contributions à l'anisotropie du matériau : magnéto-cristallin, surface, marches...

► **L'énergie Zeeman  $E_Z$  :**

L'énergie Zeeman traduit l'interaction d'un champ magnétique extérieur avec la distribution d'aimantation du matériau. Elle s'exprime par  $E_Z = -\mu_0 \vec{H}_{app} \cdot \vec{M}$ .

► **L'énergie magnétostatique ou énergie dipolaire  $E_d$  :**

Le matériau ferromagnétique, par son aimantation, génère lui-même un champ magnétique : le champ dipolaire ou champ démagnétisant ( $\vec{H}_{dem}$ ). Comme pour un champ magnétique extérieur, le champ dipolaire interagit avec la distribution d'aimantation du matériau, ce qui se traduit par une énergie  $E_d = -\frac{1}{2}\mu_0\vec{H}_{dem} \cdot \vec{M}$ . Le facteur 1/2 provient du fait qu'il s'agit d'une auto-énergie puisque  $\vec{H}_{dem}$  est généré par la matière elle-même. Le terme d'énergie dipolaire est non local et dépend de la distribution d'aimantation dans l'ensemble de l'objet considéré. Par analogie avec l'électrostatique, on décrit couramment le champ dipolaire comme provenant de charges magnétiques de volume et de surface de densité respectives  $\rho = -div(\vec{M})$  et  $\sigma = \vec{M} \cdot \vec{n}$ , avec  $\vec{n}$  le vecteur unité de surface, dirigé vers l'extérieur de l'îlot. L'expression du champ dipolaire est alors donnée par :

$$\vec{H}_{dem}(\vec{r}) = \int_{Vol} \rho \frac{(\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} dV' + \int_{Surf} \sigma \frac{(\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} dS' \quad (4.1)$$

Le champ dipolaire et son énergie ne pourront être décrits de manière exacte et analytique que dans des cas simples où la distribution d'aimantation est strictement uniforme ou de haute symétrie. En particulier pour une aimantation uniforme,  $\langle \vec{H}_{dem}(\vec{r}) \rangle$  peut s'exprimer en fonction de l'aimantation  $\vec{M}$ , de module  $M_s$ , selon  $\langle \vec{H}_{dem} \rangle = -(\overline{N_d})\vec{M}$  où  $(\overline{N_d})$  est le tenseur des coefficients de champ démagnétisant, de trace égale à 1. Cette expression décrit la valeur moyenne du champ dipolaire sur le volume de l'échantillon ;  $\vec{H}_{dem}(\vec{r})$  n'est en effet uniforme que pour les systèmes limités par une surface de degré inférieur ou égal à 2. Les coefficients de champ démagnétisant sont reliés à la forme exacte de l'échantillon. Si les axes principaux de l'objet sont orientés suivant  $\vec{x}$ ,  $\vec{y}$ ,  $\vec{z}$ , le tenseur est diagonal et on vérifie  $N_x + N_y + N_z = 1$ ,  $0 \leq N_i \leq 1$ . Pour une plaque infinie uniformément aimantée perpendiculairement à la surface ( $N_x = N_y = 0$  et  $N_z = 1$ ),  $\vec{H}_{dem} = -\vec{M}_s$  et  $E_d = \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ . Les coefficients de champ démagnétisant peuvent également être déterminés analytiquement pour des particules de géométrie ellipsoïdale [Osborn45], ou parallélépipédique [Aharoni98, Hubert98].

Pour caractériser l'énergie dipolaire, on introduit généralement la grandeur  $K_d = \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ , qui correspond au maximum de la densité d'énergie dipolaire disponible dans un matériau donné.

### 4.1.2 Origine des domaines

$\vec{H}_{dem}$  étant globalement antiparallèle à  $\vec{M}$  (angle  $(\vec{M}, \vec{H}_{dem})$  supérieur à  $90^\circ$ ), l'énergie dipolaire est un terme positif proportionnel à  $M_s^2$ , qui élève donc l'énergie totale du système. Cette énergie n'est pas favorable par rapport à l'orientation uniforme de l'aimantation dans le matériau contrairement au terme d'échange. La compétition de ces deux types d'énergie est à l'origine de la formation des domaines magnétiques. En fonction des dimensions et des propriétés intrinsèques du matériau considéré, il pourra être énergétiquement plus favorable de présenter une configuration magnétique où tous les moments sont alignés localement dans une région de l'échantillon, mais cette direction variant d'une région à une autre de telle manière à ce que le champ dipolaire sur tout l'échantillon puisse être diminué en grande proportion. A l'intérieur de chaque région (les domaines magnétiques) les moments pointent tous dans la même direction. Entre deux domaines d'orientations différentes, il est nécessaire de créer une zone de transition (les parois de domaines) dans laquelle les moments ne sont nécessairement plus alignés. A cette zone de transition correspond un coût énergétique relié à une énergie d'échange et une énergie d'anisotropie supplémentaires.

En définitive, la configuration en domaines qui sera adoptée par le système résulte, d'une part, de la compétition entre les différentes énergies magnétiques, et elle dépend d'autre part de l'histoire en champ du système.

### 4.1.3 Longueurs et paramètres caractéristiques

La configuration d'équilibre adoptée par le matériau magnétique résulte donc de la compétition entre les différents termes d'énergie que nous venons de présenter. La compétition entre ces énergies résulte en l'existence de longueurs caractéristiques : largeur de paroi  $\ell_{Bloch}$ , longueur d'échange  $\ell_{ech}$ , et par un facteur de qualité  $Q$ , que l'on définit ci-dessous.

► **La longueur d'échange,  $\ell_{ech}$  :**

La première longueur caractéristique est la longueur d'échange : cette dimension sépare la zone d'influence où l'emporte l'échange de celle où règne l'énergie dipolaire. Par analyse dimensionnelle cette longueur varie avec  $\sqrt{\frac{A_{ech}}{K_d}} = \sqrt{\frac{2A_{ech}}{\mu_0 M_s^2}}$ . Par analogie avec la définition de la largeur de parois, nous utilisons comme définition  $\ell_{ech} = \pi \sqrt{\frac{A_{ech}}{(1/2)\mu_0 M_s^2}}$ . Il faut prendre garde lors de la comparaison de données de la littérature que cette définition n'est pas unique et que suivant les auteurs on trouve différents facteurs associés à  $\sqrt{\frac{2A_{ech}}{\mu_0 M_s^2}}$  pour définir

$\ell_{ech}$ .

► **Largeur de paroi :**

La largeur de paroi caractérise la compétition entre les énergies d'échange et d'anisotropie. La longueur qui peut être extraite de la compétition entre ces deux énergies est reliée à  $\sqrt{\frac{A_{ech}}{\kappa}}$ . Si on considère l'expression de la largeur d'une paroi de Bloch pour une anisotropie uniaxiale, on se rend compte que celle-ci n'a pas d'extrémités nettes. On définit d'habitude la largeur d'une paroi à  $180^\circ$  comme sa description asymptotique, soit  $\ell_{Bloch} = \pi\sqrt{\frac{A_{ech}}{\kappa}}$ . Notons que l'énergie par unité de surface d'une telle paroi est  $\gamma_P = 4\sqrt{A_{ech}\kappa}$ . Ces expressions ne sont strictement valables que pour une anisotropie uniaxiale, mais elles donnent néanmoins le bon ordre de grandeur dans le cas de Fe qui est cubique.

Ces deux longueurs caractéristiques font intervenir l'échange, et déterminent approximativement la taille en dessous de laquelle l'aimantation dans le système est quasiment uniformément aimantée quelque soit le champ appliqué. Le retournement de l'aimantation peut alors être décrit avec confiance par le modèle de Stoner-Wohlfarth [Stoner91]. Il faut noter que  $\ell_{ech}$  et  $\ell_{Bloch}$  ne correspondent qu'à des cas limites, et qu'en pratique  $A_{ech}$ ,  $\kappa$  et  $K_d$  interviennent dans la définition de la taille critique. Au dessus de cette taille critique le type de comportement dépend de l'anisotropie microscopique et de l'anisotropie dipolaire comme discuté ci-dessous.

► **Le facteur de qualité :**

Pour caractériser l'influence de l'anisotropie par rapport au dipolaire, on considère le facteur de qualité  $Q = \frac{\kappa}{K_d}$ . Suivant la valeur de  $Q$ , différents types de configuration en domaines peuvent exister comme nous allons le décrire succinctement ci-dessous. On note que  $Q \gg 1$  correspond à un matériau avec forte anisotropie alors que  $Q \ll 1$  correspond à une faible anisotropie.

**Cas des particules à forte anisotropie  $Q = \frac{\kappa}{K_d} \gg 1$**

Lorsque l'anisotropie est le terme d'énergie prédominant, l'aimantation s'aligne naturellement parallèlement à l'axe d'anisotropie. Si la dimension de l'échantillon est finie suivant cet axe facile, il peut apparaître une structure en domaine avec des parois fines, généralement orientées parallèlement à l'axe de facile aimantation.

La configuration en domaines qui sera la plus stable est donnée en fonction

TAB. 4.1 – Grandeurs et longueurs magnétiques caractéristiques du Fer.

$A_{ech}$	$\kappa_1^{cub.}$	$M_s$	$K_d$	$\ell_{ech} =$	$\ell_{Bloch} =$	$Q = \kappa/K_d$
			$\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$	$\pi\sqrt{A_{ech}/K_d}$	$\pi\sqrt{A_{ech}/\kappa}$	
(J/m)	(J/m <sup>3</sup> )	(A/m)	(J/m <sup>3</sup> )	nm	nm	
$2 \times 10^{-11}$	$4.8 \times 10^4$	$1.75 \times 10^6$	$1.9 \times 10^6$	$\simeq 10$	60	$2.5 \times 10^{-2}$

de la taille de la particule en comparant les énergies estimées de plusieurs configurations. En particulier, on peut déterminer la taille limite de transition monodomaine/multidomaine, qui est donnée à un facteur caractéristique de la forme de la particule près, par  $\gamma_P/K_d (= Q\ell_{Bloch})$ , [Hubert98]. Il est à noter que bien que l'on considère la limite  $Q \gg 1$ , c'est l'existence de  $K_d$  (même faible) qui favorise l'apparition des domaines.

#### Cas des particules à faible anisotropie $Q \ll 1$

Dans le cas de particules de faible anisotropie,  $Q \ll 1$ , les seuls termes de l'énergie magnétique totale à considérer sont l'énergie d'échange et l'énergie dipolaire. L'orientation et la forme des domaines sera essentiellement guidée par la forme de la particule.

Lorsque la particule est de taille bien supérieur à  $\ell_{ech}$ , l'échange n'est plus le terme d'énergie prédominant, et la particule n'est plus strictement monodomaine. Lorsque les dimensions de la particule sont supérieures à limite monodomaine, il peut exister dans le cas de structures de forme non ellipsoïdale, des configurations à flux magnétique continu : états fleurs, état C, état S... [Rave00]. Ce type de configuration est attendu pour des dimensions de la particule supérieures à  $\ell_{ech}$  et de l'ordre de grandeur ou inférieure à la  $\ell_{Bloch}$ . Si les dimensions de l'élément sont plus grandes que ces deux longueurs caractéristiques, on s'attend à une configuration multidomaine.

Il n'existe pas de modèles pour déterminer pour quelles dimensions la particules passera d'un état d'équilibre monodomaine, à un état d'équilibre à flux continu d'aimantation, ou multidomaine. Dans la littérature, on peut trouver des diagrammes de phase indiquant en fonction des longueurs d'échange les régions de stabilité de chaque configuration. Ces diagrammes de phases sont basés sur les résultats de simulations micromagnétiques ou de l'observation des configurations en domaine sur un ensemble de particules de dimensions variables, et dépend de la géométrie de la particule : cube, disque plat, triangle plat... [Rave98, Cowburn00].

Les grandeurs caractéristiques du Fer sont rassemblées dans le Tableau 4.1. On note en particulier que  $Q = 2.5 \times 10^{-2} \ll 1$ ,  $\ell_{ech} \simeq 10\text{nm}$  et  $\ell_{Bloch} \simeq 60\text{nm}$ .

#### 4.1.4 Modèle de Van den Berg

Le modèle de Van den Berg permet de déterminer les configurations d'équilibre d'un matériaux ferromagnétique 2D (épaisseur négligeable devant la taille de l'objet), idéalement doux ( $Q \ll 1$ ), de forme quelconque, et de taille grande devant  $\ell_{ech}$  et  $\ell_{Bloch}$ . En définitive, seule l'énergie dipolaire doit être prise en compte [van den Berg85, van den Berg86, van den Berg87]. Les champs dipolaires liés aux parois étant négligés, le problème se ramène à la détermination d'une configuration annulant les charges de volume et les charges de surface :

$$\begin{aligned} \vec{m} &= \frac{\vec{M}}{M_s} \\ |\vec{m}| &= 1 \\ div(\vec{m}) &= 0, \text{ à l'intérieur de la particule} \\ \vec{m} \cdot \vec{n} &= 0, \text{ à la surface de la particule} \end{aligned} \quad (4.2)$$

avec  $\vec{n}$  est le vecteur normal à la surface de la particule, dirigé vers l'extérieur.

La démonstration de la construction de Van den Berg est fondée sur l'utilisation des caractéristiques de Cauchy, pour trouver la distribution de  $\vec{m}$  qui satisfait les conditions  $div(\vec{m}) = 0$ . Van den Berg montre que les courbes caractéristiques sont des droites perpendiculaires aux vecteurs  $\vec{m}$ . Du fait de la condition de bord, ces droites sont également perpendiculaires aux bords de la particule. Lorsque deux courbes caractéristiques ou plus se croisent, il y a une ambiguïté sur  $\vec{m}$ . Cette ambiguïté est levée en introduisant des singularités correspondant à des frontières entre deux domaines : parois infiniment minces.

Ce modèle s'applique à des géométries 2D quelconques. La construction géométrique pour déterminer les lieux des parois est la suivante :

- les parois d'une structure sont les lieux géométriques de tous les centres des cercles tangents aux bords de l'objet en au moins deux points, et qui sont contenus dans l'objet.
- pour chaque cercle, le vecteur aimantation est perpendiculaire à chaque rayon tangent aux bords.
- une paroi ne peut s'interrompre que sur une autre paroi ou sur une singularité de la développée (centre des cercles tangents), à savoir, le centre d'un cercle tangent à un bord convexe dont le rayon est localement minimum. Les courbes de segments de bord concave n'ont pas de points d'intersection dans la région adjacente à ce segment.

La structure en domaines obtenue par cette méthode n'est cependant pas unique. Des structures plus compliquées peuvent être obtenues en subdivisant virtuellement la particule considérée et en appliquant l'algorithme expliqué ci-dessus à chaque par-

tie. La ligne de coupe correspond alors ou à une paroi, ou à une zone uniformément aimantée.

La Figure 4.1 présente la structure de base et une structure composite pour un ellipsoïde et une forme hexagonale qui reproduit la base des îlots 3D compacts présentés dans le CHAP. 2.

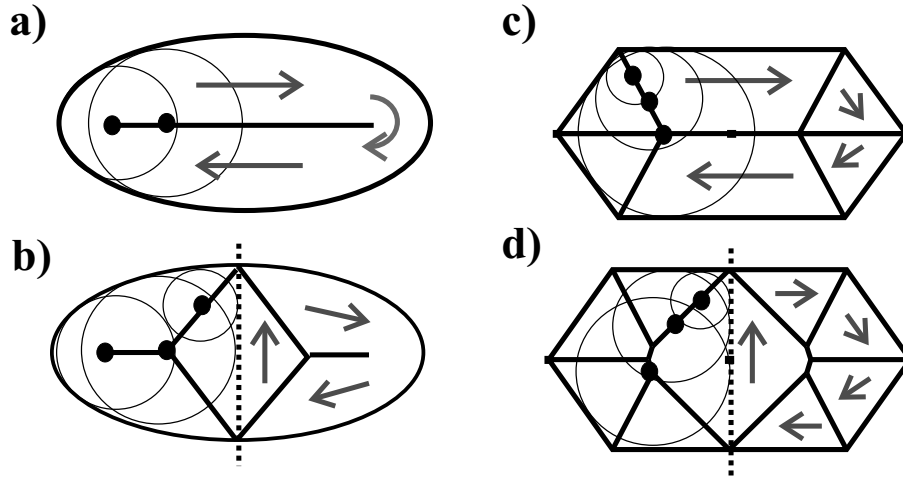


FIG. 4.1 – Configuration de base de la construction de Van den Berg pour (a) un ellipsoïde, et (c) un hexagone allongé dont la forme reproduit la base des îlots compacts présentés dans le CHAP. 2. (b) et (d) correspondent aux configurations composites de l’ellipsoïde et de l’hexagone allongé subdivisés virtuellement selon la ligne pointillée.

Comme noté plus haut, les discontinuités linéaires introduites sont supposées ne pas générer de champ de fuite alors que toute paroi en couche mince agit comme une ligne dipolaire de charges, qui sont susceptibles de modifier la configuration d’équilibre par rapport aux prédictions de Van den Berg. Si les éléments considérés sont excessivement larges par rapport à la largeur des parois alors le caractère général de la configuration en domaine suivra les principes de Van den Berg.

### 4.1.5 Simulations micromagnétiques

Dans la plupart des cas, il n’existe pas de solution générale aux équations micromagnétiques, notamment du fait de la non localité de  $H_{\text{dem}}$ . Il n’existe que de rares cas particuliers pour lesquels il est possible d’appliquer des modèles permettant de résoudre analytiquement (de manière exacte ou approchée) les équations micromagnétiques : modèle de Stoner-Wohlfarth dans le cas de géométries simples et d’une aimantation uniforme, modèle de Van den Berg pour un système 2D dans l’approximation  $Q \rightarrow 0$ , modèle de Landau-Lifshitz lorsque  $Q \rightarrow \infty$ . Dans tous les autres cas, il faut faire appel aux simulations micromagnétiques.

La méthode repose sur une approche variationnelle. On considère la variation de l'énergie du système :

$$\begin{aligned}\varepsilon_{tot} &= \varepsilon_{zee} + \varepsilon_{dem} + \varepsilon_{ech} + \varepsilon_{an} \\ \varepsilon_{tot} &= \int_{V_0} (E_Z + E_d + E_{ech} + E_a) dV_0\end{aligned}\quad (4.3)$$

Pour déterminer comment le système évolue à partir d'un état donné, la technique la plus couramment utilisée est l'intégration de l'équation de Landau-Lifshitz-Guilbert, qui mime les processus physiques de minimisation de l'énergie totale  $E_{tot}$  :

$$\frac{\partial \vec{m}}{\partial t} = -\vec{m} \times \vec{H}_{eff} + \alpha_{LL} \vec{m} \times (\vec{m} \times \vec{H}_{eff})\quad (4.4)$$

Elle fait intervenir la notion de champ effectif  $H_{eff}(\vec{r}) = -\frac{\partial E_{tot}}{\partial \vec{m}(\vec{r})}$  ( $\vec{m} = \frac{\vec{M}}{M_s}$ ) qui comprend des termes locaux, faciles à calculer, et un terme non local  $H_{dem}$  long à évaluer car il dépend de la distribution d'aimantation dans l'ensemble de l'objet considéré.  $\alpha_{LL}$  correspond à la constante d'amortissement qui est pris égal à 1 dans les simulations que nous présentons.

Pratiquement il est nécessaire de passer de la description continue à une description discrète pour l'utilisation de méthodes de résolutions numériques. On échantillonne ainsi la distribution d'aimantation en un nombre fini de points, angles de cellules de forme parallélépipédique dans le cas de méthodes de différences finies, comme utilisées ici. Il s'agit ensuite d'estimer les différents champs qui interviennent dans le champ effectif local. De manière à décrire correctement la physique mise en jeu, il est nécessaire que la taille du maillage soit inférieure aux longueurs caractéristiques des phénomènes magnétiques, c'est à dire de la longueur d'échange et de la longueur de paroi. Nous avons utilisé une taille de cellule donnée par  $0.5\ell_{ech} = 5\text{nm}$ .

Du fait que  $\vec{H}_{dem}$  a une influence à longue distance, donc interagit avec un grand nombre de moments, il est nécessaire d'utiliser des techniques de calculs permettant de réduire au minimum les temps de calcul. La méthode développée au laboratoire est basée sur l'utilisation des transformées de Fourier rapides (FFT). De plus il est nécessaire d'avoir un schéma d'intégration temporelle solide pour intégrer correctement les équations de LLG, autrement dit pour obtenir des états micromagnétiques possibles.

Les simulations micromagnétiques que nous présentons dans ce travail ont été réalisées en collaboration avec J.C. Toussaint. Cet outil de simulation numérique a été développé au laboratoire par B. Kevorkian et J.C. Toussaint. Pour plus de détails concernant les fondements micromagnétiques de la technique de simulation ainsi que sa mise en oeuvre, je renvoie le lecteur à leurs travaux [Kevorkian98, Toussaint98, Fruchart98b].

Les représentations graphiques des simulations ont été réalisées par N. Collins, lors de son séjour au laboratoire. Les conventions de représentations sont les suivantes : les flèches donnent la direction de l'aimantation dans le plan de coupe de la figure, et les couleurs décrivent la composante  $M_z$  de l'aimantation.

## 4.2 Méthodes de caractérisation

La caractérisation des propriétés magnétiques des échantillons a été effectuée pour une part, par des mesures macroscopiques sur une assemblées de particules de Fe. Nous avons utilisé des magnétomètres à mesure de flux fabriqués au laboratoire : un VSM (Magnétomètre à Echantillon Vibrant) et un SQUID (Superconducting Quantum Unit Interference Device). La description du principe et des particularités techniques de ces appareils peut être trouvée respectivement dans les thèses de O. Fruchart [Fruchart98a] et L. Thomas [Thomas97]. Nous avons également réalisé une série de mesures en collaboration avec F. Scheurer et A. Derory (IPCMS-Strasbourg) sur un SQUID commercial Quantum Design.

Les propriétés magnétiques de particules individuelles ont été également étudiées par des mesures locales de Microscopie à Force Magnétique (MFM) en collaboration avec Y. Samson (DRFMC-CEA-Grenoble), et par des mesures micro-SQUID en collaboration avec W. Wernsdorfer.

Dans cette section, nous rappelons brièvement le principe du MFM pour justifier l'approche que nous avons suivie pour interpréter les images obtenues et simuler qualitativement les images MFM correspondant à des configurations magnétiques déterminées par les simulations micromagnétiques. Puis nous rappelons succinctement le principe des mesures par micro-SQUID et nous présentons plus spécifiquement la méthode que nous avons mise en oeuvre pour la fabrication de micro-SQUID directement au contact des particules de Fe épitaxiées.

### 4.2.1 Mesures par MFM

Le microscope à force magnétique (MFM) est une technique dérivée du microscope à force atomique (AFM) qui enregistre les forces magnétostatiques (ou leur gradient) entre l'échantillon et une pointe ferromagnétique.

Les mesures MFM que nous présentons dans le CHAP. 5 ont été réalisées au DRFMC-CEA-Grenoble en collaboration avec Y. Samson. Le microscope utilisé est un appareil Nanoscope de Digital Instrument. Le principe pratique de la mesure est le suivant : L'échantillon est balayé deux fois : un premier passage en mode AFM non-contact permet de mesurer le profil topographique de la surface, le deuxième passage est réalisé à une hauteur de vol constante au dessus du profil déterminé au cours du premier passage, afin de cartographier le gradient des forces magnétosta-

tiques. Nous avons utilisé une hauteur de vol de l'ordre de 30nm. Cette méthode ("lift mode") permet une bonne séparation entre le signal topographique et le signal magnétique. Les pointes utilisées sont des pointes pyramidales en Si sur lesquelles est déposée par pulvérisation cathodique une couche magnétique de Co-Cr. Les pointes sont aimantées avant la mesure le long de l'axe de la pyramide (approximativement suivant  $\vec{z}$ ).

Revenons sur le principe de détection du MFM. Dans le mode oscillant, que nous utilisons, le décalage  $\Delta f$  de fréquence de vibration de la pointe est donné par  $\frac{\Delta f}{f} = \frac{-1}{2K} \frac{\partial^2 E_{inter.}}{\partial \vec{n}^2}$  où  $K$  est la constante de raideur du levier,  $\vec{n}$  la direction d'oscillation de la pointe que l'on assimilera à  $\vec{z}$ , et  $E_{inter.}$  l'énergie d'interaction entre la pointe et l'échantillon [Rugar90]. En supposant que les configurations magnétiques de la pointe et de l'échantillon ne sont pas perturbées au cours de la mesure, l'énergie d'interaction peut s'écrire [Rugar90] :

$$E_{inter.} = - \int_{pointe} \vec{M}_{pointe} \vec{H}_{ech} \quad (4.5)$$

où  $\vec{H}_{ech}$  est le champ dipolaire rayonné par l'échantillon.

Pour analyser plus en détail le contraste des images MFM il faut tout d'abord se donner un modèle de l'aimantation de la pointe. Ceci est un point délicat pour l'interprétation quantitative des images MFM, et qui est discuté dans de nombreux articles [Rugar90, Wright96, Belliard97, van Schendel00]. Nous supposons ici que la pointe peut être assimilée un dipole ponctuel. Cette approximation n'est certainement pas idéale car la pointe est de taille finie et n'est sans doute pas aimantée de manière uniforme. Cette approche facile à mettre en oeuvre permet néanmoins de visualiser au moins qualitativement, l'image MFM d'une configuration micromagnétique issue des simulations.

Dans cette approximation, le contraste MFM est relié à la dérivée seconde du champ de fuite rayonné par l'échantillon :

$$\frac{\Delta f}{f} \propto \frac{\partial^2 E_{inter.}}{\partial \vec{z}^2} = M_{pointe}^x \frac{\partial^2 H_{ech}^x}{\partial z^2} + M_{pointe}^y \frac{\partial^2 H_{ech}^y}{\partial z^2} + M_{pointe}^z \frac{\partial^2 H_{ech}^z}{\partial z^2} \quad (4.6)$$

qui dans l'approximation d'une aimantation de la pointe uniquement suivant  $\vec{z}$  donne

$$\frac{\Delta f}{f} \propto M_{pointe}^z \frac{\partial^2 H_{ech}^z}{\partial z^2} \quad (4.7)$$

Une autre approche conventionnelle est d'assimiler la pointe à un monopole [Belliard97]. Le décalage de fréquence de vibration, et par suite le contraste MFM est alors donné par :

$$\frac{\Delta f}{f} \propto \frac{\partial H_{ech}^z}{\partial z} \quad (4.8)$$

Le contraste magnétique MFM est donc essentiellement une fonction dérivée des champs de fuite de l'échantillon multiplié par l'aimantation de la pointe. On rappelle que les champs de fuite de l'échantillon ont comme expression :

$$\vec{H}_{ech}(\vec{r}) = \int_{Vol} \rho \frac{(\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} dV' + \int_{Surf} \sigma \frac{(\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} dS' \quad (4.9)$$

avec  $\rho = -div\vec{M}$  les charges de volume de l'échantillon et  $\sigma = \vec{M} \cdot \vec{n}$  les charges de surface.

Pour les particules que nous allons considérer dans le CHAP. 5, les configurations magnétiques adoptées à champ nul sont multidomaines avec fermeture de flux et avec une aimantation essentiellement dans le plan. Le contraste MFM aura donc principalement pour origine les parois de domaines : de type Néel qui génèrent des charges de volume, ou de type Bloch qui peuvent aussi induire localement des charges de surface.

Pour simuler qualitativement les images MFM à partir des résultats des simulations micromagnétiques, nous avons donc calculé dans un premier temps les charges de surface et de volume générées par la distribution d'aimantation de la configuration calculée à la rémanence. Une carte de la dérivée première  $\frac{\partial H_{ech}^z}{\partial z}$  et de la dérivée seconde du champ démagnétisant  $\frac{\partial^2 H_{ech}^z}{\partial z^2}$  a ensuite été calculée en des points situés à hauteur constante  $h = 30\text{nm}$  au dessus de l'îlot.

## 4.2.2 Mesures par micro-SQUID

La technique micro-SQUID a été développée à Grenoble par A. Benoit (CRTBT) et appliquée à l'étude de particules magnétiques par W. Wernsdorfer [Wernsdorfer96a]. Elle utilise les avantages de la grande sensibilité du SQUID (Superconducting Quantum Interference Design) et la possibilité d'un fort couplage entre le champ rayonné par une particule magnétique et le micro-SQUID du fait de leur proximité. La sensibilité actuelle du micro-SQUID du laboratoire permet de détecter des sauts d'aimantation de  $10^3 \mu_B$  [Jamet01]. L'utilisation de cette technique a permis de réaliser de nombreuses études sur le renversement de particules de tailles submicroniques comprenant des études du renversement de particules multidomaines [Wernsdorfer96c], puis de particules monodomaines [Wernsdorfer97a], jusqu'à l'étude du renversement de l'aimantation par effet tunnel dans des agrégats moléculaires [Wernsdorfer99].

Dans un SQUID, la détection de flux utilise une boucle supraconductrice interrompue par deux jonctions Josephson (utilisation de micro-ponts dans le cas des micro-SQUID), points où la supraconductivité est affaiblie. Le courant critique du SQUID est une fonction périodique du flux  $\Phi$  traversant la boucle, avec pour période le quantum de flux  $\Phi_0 = h/2e = 2 \times 10^{-15}\text{Wb}$ . En pratique, la mesure des

variations de l'aimantation de l'échantillon se fait à flux constant à l'aide d'une bobine de contre-réaction qui compense la variation de flux de l'échantillon dans le SQUID. Une description plus détaillée du principe de fonctionnement du micro-SQUID ainsi que les différentes méthodes de mesures peuvent être trouvées dans [Wernsdorfer95a, Wernsdorfer96a, Orozco99, Wernsdorfer01].

Le retournement de l'aimantation est étudié en mesurant les champs de fuite rayonnés par la particule dans la boucle du micro-SQUID. Un point important pour les mesures par micro-SQUID est donc de positionner les particules de manière à avoir un couplage optimum. Une première approche a été de réaliser les particules par lithographie directement sur le micro-SQUID [Wernsdorfer95b, Wernsdorfer96a]. Plus couramment les particules sont préparées par diverses méthodes puis dispersées aléatoirement sur une plaquette contenant un grand nombre de SQUID [Wernsdorfer96b, Wernsdorfer97a, Wernsdorfer97b]. Statistiquement, il existe toujours une particule suffisamment bien positionnée pour rendre possible l'étude de ses propriétés magnétiques. Une autre approche développée plus récemment est l'incorporation de petites particules de quelques nanomètres de diamètre, directement dans la boucle supraconductrice du micro-SQUID, ce qui permet un couplage très important au niveau des micro-ponts [Jamet01]. L'étude des systèmes déposés en couche mince est également possible en approchant une plaquette de micro-SQUID de la couche à mesurer [Fruchart98a, Fruchart99b]. Cette méthode est très sensible à la propreté des échantillons (poussières,...) puisque le micro-SQUID doit être très proche de la couche pour ressentir le champ de fuite. Par ailleurs, dans le cas d'un réseau de particules, lorsque la période du réseau est comparable ou inférieure à la taille du micro-SQUID les signaux issus d'un grand nombre de particules se superposent et l'interprétation des mesures devient complexe [Fruchart98a, Fruchart99b].

Pour l'étude par micro-SQUID des particules de Fe épitaxiées sur Mo(110) (cf. section 5.3), nous avons choisi de réaliser les micro-SQUID en couche mince directement sur les particules de fer. L'intérêt de cette approche est de réduire au maximum la distance entre les particules et le micro-SQUID pour avoir un bon couplage. Un autre avantage est la possibilité de caractériser précisément la morphologie de la particule étudiée (par AFM par exemple), et d'autre part de pouvoir répéter les expériences sans modifier les caractéristiques d'orientation et de couplage de la particule avec le micro-SQUID.

Dans le paragraphe qui suit, nous décrivons la méthode de préparation des échantillons que nous avons développée.

### **Méthode de fabrication de micro-SQUID de Nb sur les particules de Fe**

La fabrication des micro-SQUID de Nb se déroule en deux étapes : la première correspond à la croissance d'une couche de Nb par dessus les particules de Fe, la

deuxième est la nanostructuration de la couche de Nb par lithographie électronique et gravure ionique réactive (RIE), qui a été réalisée en collaboration avec D. Mailly (L2M-Bagneux).

Pour un bon fonctionnement des micro-SQUID, il a fallu adapter les processus de dépôt de manière à, d'une part, ne pas altérer les propriétés structurales et morphologiques des îlots épitaxiés de Fe, et d'autre part, à obtenir une couche de Nb supraconductrice à 2K et présentant un courant critique modéré. Ces critères n'ont pas été satisfaits de manière immédiate. 7 étapes de dépôt ont du être définies pour obtenir des structures fonctionnelles.

Les deux premières couches correspondent à la couche tampon de Mo de 5 à 6nm d'épaisseur, suivie du dépôt des îlots compacts 3D de Fe. Pour ne pas induire de modifications structurales des îlots de Fe, l'ensemble des dépôts suivants sont réalisés à 300K. Les couches déposées reproduisent assez fidèlement la morphologie des îlots de Fe, qui peut être caractérisée après les dépôts par AFM.

La première difficulté à surmonter est la réalisation d'une couche mince de Nb supraconductrice. La supraconductivité de Nb dépend en effet de l'épaisseur de Nb déposée mais aussi de ses propriétés structurales et chimiques. Par ailleurs, il est nécessaire pour les mesures micro-SQUID que le Nb ait un courant critique faible ce qui est obtenu dans la limite des faibles épaisseurs. La Figure 4.2 présente l'évolution de la température critique de transition supraconducteur/normal  $T_C$  mesurée pour différentes séries d'échantillons. On vérifie tout d'abord que  $T_C$  croît avec l'épaisseur de Nb. Par ailleurs, les effets de proximité entre la couche de Nb supraconductrice et un matériau ferromagnétique (couche continue de Fe de 1nm déposée à température ambiante ou îlots de Fe) induisent également une diminution de  $T_C$ . On peut augmenter  $T_C$  en intercalant une couche intermédiaire entre le Fer et le Nb. Plus l'épaisseur de la couche intermédiaire est grande, moins les effets de proximité du fer sont ressentis par le Nb (cf. Figure 4.2b). Par ailleurs, l'ajout d'une couche protectrice de Si de 2nm au dessus de la couche de Nb, empêche l'oxydation superficielle de Nb, ce qui correspond à un gain dans l'épaisseur de Nb qui peut être supraconductrice.

De manière à obtenir à la fois une  $T_C$  suffisante compatible avec des épaisseurs de couches faibles (pour que le courant critique ne soit pas trop élevé), la méthode optimum que nous avons reennu consiste à déposer au dessus des particules de Fe, un sandwich Si(2nm)/Nb/Si(2nm)/Mo(2nm).

Par ailleurs, pour que la gravure ionique réactive puisse être arrêtée avant la couche de Fe, nous avons intercalé une couche d'aluminium qui a été oxydée à l'air avant le dépôt du sandwich de Si/Nb/Si. L'alumine sert de barrière à la RIE sous  $SF_6$ , puisqu'elle est érodée bien moins vite que Nb, Mo, Si.

La Figure 4.3 résume la succession de couches minces superposées pour la fabrication des micro-SQUID avant et après l'étape de gravure. Nous avons choisi d'utiliser une épaisseur de Nb de 15nm. La température supraconductrice obtenue

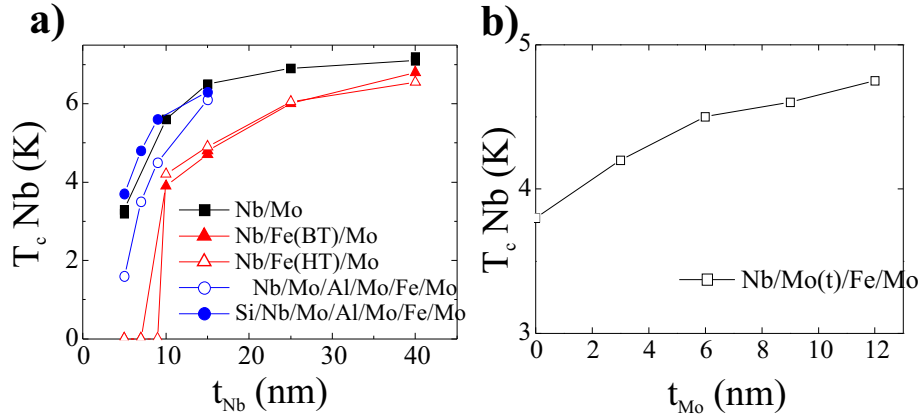


FIG. 4.2 – (a) Variations de la température de transition supra/normal  $T_C$  en fonction de l'épaisseur  $t_{Nb}$  de la couche de Nb, et pour différentes configurations de dépôt : lorsque le Nb est déposé directement sur Mo(110), lorsqu'il est déposé directement sur un dépôt de  $\Theta = 1\text{nm}$  de Fe à 300K (BT) ou à 700K (HT), en intercalant une couche de Mo(2nm)/Al(2nm)/Mo(2nm) entre Nb et Fe, ou en déposant sur Nb une couche protectrice de 2nm de Si. (b) Variation de  $T_C$  en fonction de l'épaisseur de couche tampon de Mo intercalée entre le dépôt à 700K de 1nm de Fe, et le dépôt de 10nm de Nb.

est de l'ordre de 6K.

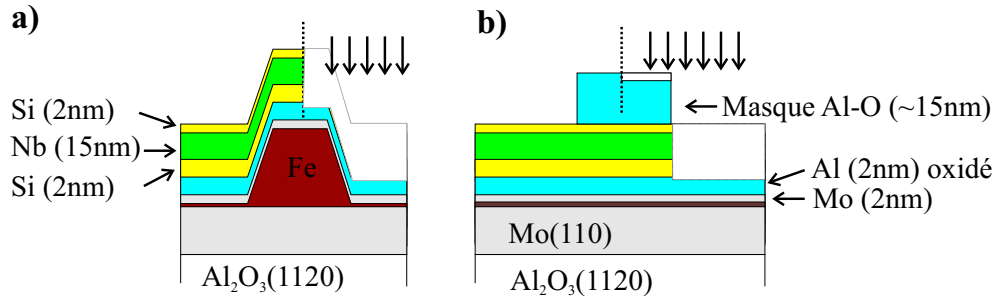


FIG. 4.3 – Représentation schématique de la succession de couches minces superposées pour la fabrication des micro-SQUID avant (gauche) et après (droite) l'étape de gravure, (a) sur un îlot de Fe, (b) au niveau d'une ligne de Nb constituant le micro-SQUID.

Au cours des mesures de micro-SQUID, nous avons rencontré un autre problème lié à la mesure du courant critique. La détection du courant critique est essentielle aux mesures par micro-SQUID puisqu'elle permet la détermination du flux traversant la boucle supraconductrice [Wernsdorfer96a]. Le courant critique est mesuré par la détection du saut de résistivité au passage supra/normal du Nb du micro-pont. Ce saut a été difficile à détecter à cause d'un effet de court-circuit par la couche tampon

de Mo, qui présente une résistivité inférieure à celle de Nb dans l'état normal, et ce malgré la présence de la barrière isolante de Al-O. Nous pensons que ces courts-circuits sont reliés à la présence de gouttelettes macroscopiques, observées après le dépôt de Nb par PLD. A l'arrivée de ces gouttelettes, la surface de l'échantillon est localement endommagée et il est possible qu'il y ait alors un contact électrique entre les couches de Nb et de Mo malgré la présence des couches d'AL-O et de Si. Les gouttelettes étant dispersées de manière aléatoire sur la surface de l'échantillon, il a néanmoins été possible de réaliser la détection du courant critique. Ce problème peut être limité en optimisant les conditions d'ablation de Nb (fluence) plus faible et plus grande surface d'ablation) ou également en augmentant la résistivité de la couche tampon de Mo, par exemple en réduisant son épaisseur.

Cette approche requiert finalement de tester un grand nombre de SQUID. Outre le problème de détection du courant critique, l'étude du renversement d'une particule individuelle ne pourra être faite que si elle est suffisamment bien couplée au micro-SQUID. A partir des quelques 100 SQUID testés, les positions des particules sont repérées par AFM. Nous avons remarqué que le couplage était optimum lorsque la particule de Fe était située à la périphérie d'un bras de micro-SQUID. Si il est positionné au milieu du bras du micro-SQUID le comportement du SQUID est perturbé car comme on peut le voir sur la Figure 4.3a, du fait de la hauteur importante des îlots, la continuité de la couche de Nb n'est alors pas assurée. Afin de se donner la possibilité de contrôler la position du micro-SQUID par rapport à la particule de Fe, nous avons par ailleurs débuté une collaboration avec V. Bouchiat et M. Faucher (CRTBT, Grenoble). L'objectif est de lithographier la boucle du micro-SQUID en utilisant une technique d'oxydation locale du film de Nb sous pointe AFM [Bouchiat01]. Nous verrons enfin dans la section 5.3 que le fait de déposer les micro-SQUID directement sur la couche de Fe qui présente une certaine rugosité (îlots compacts et îlots biseautés (cf. CHAP. 2)) se traduit par l'existence de phénomènes de piégeages de flux (vortex supraconducteur) dans la boucle du micro-SQUID qui peuvent occulter une partie du signal provenant de la particule de Fe étudiée.

# Chapitre 5

## Études d'îlots compacts 3D multidomaines

Dans ce chapitre nous nous intéressons aux propriétés magnétiques des îlots 3D compacts de Fe de dimensions suffisantes pour présenter une configuration multidomaine à la rémanence. Dans la section 5.1, nous présentons les cycles d'hystérésis obtenus sur une assemblée de particules, ainsi que les configurations en domaines des îlots, observées par MFM. La section 5.2 présente les résultats de simulations numériques sur des îlots de  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$ , permettant d'étudier l'origine des configurations magnétiques observées expérimentalement. Enfin, la section 5.3 rapporte l'étude par micro-SQUID, de la dépendance angulaire des cycles d'hystérésis d'une particule individuelle. Des simulations micromagnétiques sont réalisées pour analyser les variations de champs de saut de nucléation, en rapport avec la forme non ellipsoïdale des îlots et la possibilité d'avoir des configurations magnétiques non uniformes avant la nucléation.

### 5.1 Mesure des propriétés magnétiques

#### 5.1.1 Mesure des propriétés magnétiques sur une assemblée d'îlots

Nous avons montré dans la première partie de cette thèse que la croissance épitaxiale de Fe sur Mo(110) permet dans le régime haute température la fabrication d'îlots 3D compacts de Fe auto-assemblés. Les caractéristiques morphologiques des îlots compacts sont déterminées par la minimisation des énergies de surface/interface et de ce fait les îlots présentent une faible distribution de taille et une forme facettée correspondant à la forme d'équilibre d'un cristal de Fe supporté. Les îlots présentent un rapport d'aspect latéral proche de 2 et ils sont tous alignés suivant la même di-

rection cristallographique Mo,Fe[001], avec une densité de  $\approx 0.25 \times 10^{-6} \text{nm}^{-2}$ . La croissance de Fe étant bimodale, il se forme également des îlots biseautés d'environ 1nm de haut qui représentent un volume environ 5 fois moins important que les îlots compacts. Dans ce chapitre nous allons nous intéresser aux propriétés magnétiques des îlots 3D compacts. Les propriétés magnétiques des îlots de  $\approx 1\text{nm}$  de haut est abordé dans la discussion du CHAP. 6.

Les propriétés magnétiques ont été tout d'abord étudiées macroscopiquement par magnétométries VSM et SQUID sur une assemblée d'îlots. La Figure 5.1 présente les cycles d'hystérésis d'un échantillon élaboré à 700K pour un taux de couverture  $\Theta \simeq 4\text{nm}$ . En encart, deux images AFM rappellent une vue d'ensemble et la forme typique des îlots correspondant à l'échantillon mesuré. La taille moyenne des îlots est  $750\text{nm} \times 450\text{nm} \times 125\text{nm}$ . Le champ magnétique est appliqué successivement le long de trois axes : dans le plan suivant [001] et  $[1\bar{1}0]$ , et hors du plan suivant  $[110]$ .

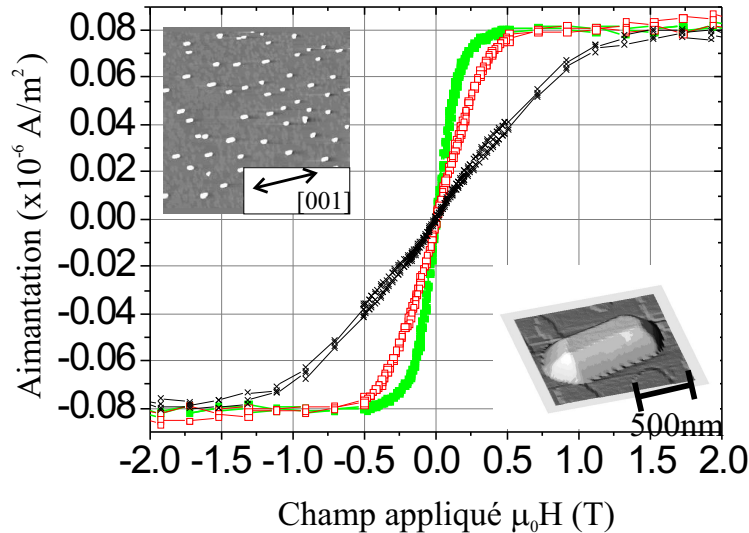


FIG. 5.1 – Cycles d'hystérésis mesurés par VSM à 300K avec le champ appliqué alternativement suivant les directions [001](■),  $[1\bar{1}0]$  (□) et  $[110]$  (×). En encart, images AFM de  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  et  $1.5\mu\text{m} \times 1.5\mu\text{m}$  rappelant les caractéristiques morphologiques de l'échantillon ( $\Theta \simeq 4\text{nm}$ ).

Aucun des cycles ne présente de rémanence, ce qui est le signe d'une configuration d'aimantation fortement non uniforme dans les îlots. Ce point n'est pas surprenant puisque toutes leurs dimensions sont bien supérieures aux longueurs caractéristiques magnétiques  $l_{ech} \approx 10\text{nm}$  et  $l_{Bloch} \approx 60\text{nm}$  (cf. section 4.1.3). Comme il s'agit d'un objet magnétique compact, l'énergie de champ démagnétisant attendue est grande pour toutes les directions de l'aimantation et est au moins un ordre de grandeur supérieure à la faible énergie d'anisotropie magnétocristalline de Fe qui favoriserait l'alignement de  $\vec{M}$  le long de  $\langle 001 \rangle$ . La configuration micromagnétique

dans un îlot est donc principalement déterminée par des effets dipolaires et, par conséquent, reliée à leur forme. Il faut remarquer que, pour l'épaisseur des îlots considérés (ici 125nm), l'anisotropie d'interface dont l'effet sur la densité d'énergie est inversement proportionnelle à l'épaisseur, apporte une correction négligeable d'après une étude précédente sur l'anisotropie de couches continues Mo/Fe/Mo(110) [Fruchart98a, Fruchart99a]. Les constantes d'anisotropie magnétocristalline du fer massif peuvent donc être utilisées :  $K_1 = 4.8 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ ,  $K_2 \simeq 2 \times 10^2 \text{ J/m}^3$ ,  $K_3 < 2 \times 10^2 \text{ J/m}^3$  [Escudier73]. Dans le cas du fer, de structure cubique centrée, l'anisotropie magnétocristalline est décrite par l'expression :

$$E_{mc} = K_1\alpha + K_2\beta + K_3\alpha^2 + \dots \quad (5.1)$$

avec  $\alpha = a_1^2a_2^2 + a_2^2a_3^2 + a_3^2a_1^2$ ,  $\beta = a_1^2a_2^2a_3^2$  et  $a_i$  les cosinus directeurs suivant les axes du cube. Les constantes d'anisotropie  $K_2$  et  $K_3$  sont faibles par rapport à  $K_1$ , et par rapport aux constantes d'anisotropie d'interface  $K_{int}$  et magnétoélastiques  $K_{me}$ . Elles pourront être négligées. Par conséquent, la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline attendue quand l'aimantation est alignée parallèlement aux directions  $[1\bar{1}0]$  ou  $[110]$  est  $E_{mc} = \frac{K_1}{4} \simeq 1.2 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ .

Les énergies d'anisotropie effectives de l'échantillon ont été estimées en mesurant l'aire entre la courbe  $M(H)$  et l'axe des ordonnées pour les trois directions  $[001]$ ,  $[1\bar{1}0]$  et  $[110]$  et sont reportées dans le Tableau 5.1. Comme attendu, l'anisotropie ainsi estimée, est de un à deux ordres de grandeur supérieure à la contribution magnétocristalline et peut par conséquent être attribuée à une anisotropie de forme dominante. En accord avec cette description, on trouve que l'axe facile est dans le plan de l'échantillon suivant  $[001]$ , c'est à dire parallèle au grand côté des îlots.

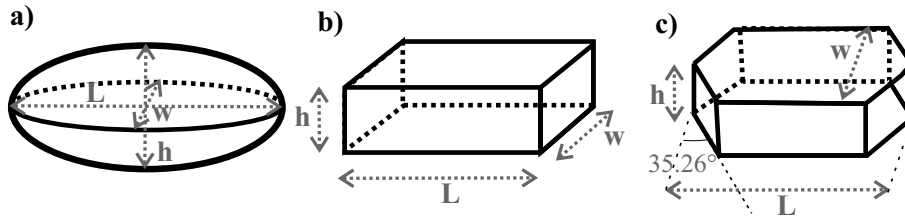


FIG. 5.2 – Formes approchées des îlots compacts : (a)ellipsoïde, (b)parallélépipède rectangle, (c)"hexaplot", utilisées dans les estimations des énergies de champ démagnétisant suivant les directions  $L//[001]$ ,  $w//[1\bar{1}0]$  et  $h//[110]$ .

Dans le but d'estimer de manière plus quantitative l'effet de la forme des îlots sur l'anisotropie, nous avons calculé l'énergie de champ démagnétisant  $E_d$  pour des formes approchantes : un ellipsoïde de révolution, un parallélépipède rectangle, une structure correspondant à un cylindre dont la base reprend la forme hexagonale de l'îlot compact de Fe, et que nous désignerons par la suite par "hexaplot" (cf.

TAB. 5.1 – Comparaison des énergies d’anisotropie déterminées à partir des cycles d’hystérésis de la Figure 5.1, et des énergies dipolaires calculées pour des formes approchées présentées sur la Figure 5.2. Les énergies d’anisotropie magnétocristalline sont également reportées. L’énergie magnétostatique totale pour un objet uniformément aimanté est  $E_d = 1.92 \times 10^6 \text{J/m}^3$ .

Fe bcc lattice dir.	$E_{\text{exp}}(\text{J/m}^3)$ expérience	$E_{\text{mc}}(\text{J/m}^3)$ magnétocrist.	$E_d(\text{J/m}^3)$ ellipsoïde	$E_d(\text{J/m}^3)$ parallélép.	$E_d(\text{J/m}^3)$ hexaplot
[001](//L)	$0.25 \times 10^6$	0	$0.21 \times 10^6$	$0.22 \times 10^6$	$0.27 \times 10^6$
[1 $\bar{1}$ 0](//w)	$0.52 \times 10^6$	$0.01 \times 10^6$	$0.40 \times 10^6$	$0.40 \times 10^6$	$0.58 \times 10^6$
[110](//h)	$1.31 \times 10^6$	$0.01 \times 10^6$	$1.31 \times 10^6$	$1.30 \times 10^6$	$1.07 \times 10^6$

Figure 5.2c). La détermination des coefficients de champ démagnétisant pour un ellipsoïde quelconque est présentée dans [Osborn45]. Pour le parallélépipède rectangle, il existe une expression analytique des coefficients de champ démagnétisant dans le cas d’une aimantation uniforme [Aharoni98, Hubert98]. Les coefficients de champ démagnétisant de l’hexaplot ont été calculés numériquement en utilisant une application développée au laboratoire par J.-C. Toussaint [Toussaint]. Dans tous les cas, les formes approchantes reprennent les dimensions moyennes des îlots de Fe déterminées à partir des images AFM. Nous avons utilisé pour le calcul de l’énergie une aimantation à saturation du fer massif :  $M_s = 1750 \text{kA/m}$ . L’ensemble des énergies d’anisotropie calculées sont rapportées dans le Tableau 5.1.

Les valeurs d’anisotropie expérimentales sont bien reproduites par les énergies de champ démagnétisant calculées pour ces trois formes approchées. Ceci confirme que l’anisotropie de l’échantillon est bien dominée par l’anisotropie de forme des îlots. L’accord obtenu entre les énergies d’anisotropie mesurées sur tout l’échantillon avec les énergies calculées pour un seul îlot corrobore une relativement faible distribution de rapports d’aspect et d’orientation de l’ensemble des îlots épitaxiés de Fe/Mo(110). Cependant, il faut noter que la somme des trois énergies d’anisotropie déterminées expérimentalement ( $2.08 \times 10^6 \text{J/m}^3$ ) est légèrement supérieure à l’énergie magnétostatique attendue pour le fer ( $1.92 \times 10^6 \text{J/m}^3$ ). La différence entre l’énergie mesurée et l’énergie magnétostatique pourrait provenir de contributions à l’anisotropie autres que la forme. Nous avons déjà discuté du fait que l’énergie d’anisotropie magnétocristalline et d’interface est attendue être négligeable du fait de l’épaisseur importante des îlots :  $E_{\text{mc}} \simeq 0.01 \times 10^6 \text{J/m}^3$ . La contribution magnétoélastique à l’anisotropie peut être estimée à partir des déformations mesurées par diffraction de rayons X :  $\epsilon_{[001]} \simeq 0.5\%$ ,  $\epsilon_{[1\bar{1}0]} \simeq 0.2\%$ ,  $\epsilon_{[110]} < 0.05\%$  (cf. section 2.4). Nous rappelons que ces déformations correspondent à la contribution simultanée des îlots compacts et des îlots biseautés (cf. section 2.4). Pour avoir un ordre de grandeur, on considère une déformation isotrope dans le plan  $\epsilon_{//} = 0.3\%$ . Les énergies

d'anisotropie magnétoélastiques sont alors données par :

$$\begin{aligned} E_{\text{me}}([1\bar{1}0]) - E_{\text{me}}([001]) &= -\frac{1}{2}(B_1 - B_2)(\epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}) \\ E_{\text{me}}([110]) - E_{\text{me}}([001]) &= -\frac{1}{2}(B_1 + B_2)(\epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}) \end{aligned} \quad (5.2)$$

avec  $B_1 = -3.43 \times 10^6 \text{J/m}^3$  et  $B_2 = 7.83 \times 10^6 \text{J/m}^3$  les coefficients de couplage magnétoélastique du fer [Sander99]. Il faut noter qu'il s'agirait ici d'une borne supérieure à l'anisotropie magnétoélastique, puisque comme l'ont mesuré Sander et al., les constantes de couplage magnétoélastiques d'une couche ultra-mince ne sont pas égaux à ceux du massif, mais décroissent avec la déformation pour Fe/W(110) [Sander99]. L'anisotropie magnétoélastique favoriserait la direction [001] dans le cas de Fe/Mo(110), avec  $E_{\text{me}}([110]) - E_{\text{me}}([001]) = 0.020 \times 10^6 \text{J/m}^3$  et  $E_{\text{me}}([1\bar{1}0]) - E_{\text{me}}([001]) = 0.008 \times 10^6 \text{J/m}^3$ . Cette contribution reste cependant négligeable par rapport à l'anisotropie de forme de l'échantillon.

La différence pourrait également provenir des îlots biseautés présents entre les îlots compacts ou de la monocouche continue de mouillage. Pour le taux de couverture considéré, les îlots biseautés forment une couche quasi-continue dont l'épaisseur est  $\approx 1 \text{nm}$ . Pour ces structures, la contribution de l'interface à l'énergie microscopique n'est plus négligeable et leur densité d'énergie microscopique supplémentaire dans la direction  $[1\bar{1}0]$  est estimée à  $\kappa \simeq (4.5 \times 10^4 + \frac{4.27 \times 10^5}{e}) \simeq 0.4 \times 10^6 \text{J/m}^3$ , avec  $e$  l'épaisseur en nm de la couche de Fe [Fruchart98a, Fruchart99a]. Compte tenu du volume relatif  $V_{\text{îlotsbis.}}/V_{\text{tot.}} \approx 0.15$  pour cet échantillon, l'erreur induite sur l'estimation de l'énergie d'anisotropie des plots 3D serait  $\approx +0.06 \times 10^6 \text{J/m}^3$  suivant la direction  $[1\bar{1}0]$ , ce qui constitue encore une correction faible. L'anisotropie d'une couche ultra-mince de Fe/Mo(110) hors du plan suivant  $[110]$  n'a pas été rapportée à notre connaissance. Il faut noter que les propriétés magnétiques de cette couche de  $\approx 1 \text{nm}$  de Fe/Mo(110) n'a pas pu être clairement identifiée au cours de nos expériences (cf. CHAP. 6).

Examinons maintenant plus en détail les cycles d'hystérésis. Les cycles d'hystérésis réalisés sur le même échantillon à 10K et à 300K se superposent parfaitement, quelque soit l'orientation du champ appliqué (dans le plan ou hors du plan). Les propriétés intrinsèques des îlots 3D compacts ne varient que très peu entre 10K et 300K, et sont assimilables à celles du fer massif. Ce comportement n'est pas étonnant compte tenu de la taille importante des îlots.

L'examen plus détaillé des courbes d'aimantation suivant [001] et  $[1\bar{1}0]$  révèle la présence d'un léger hystérésis (cf. Figure 5.3). Ce dernier est mis clairement en évidence en représentant la différence des cycles de l'aimantation en champ croissant et en champ décroissant. Cet hystérésis magnétique est typique d'événements irréversibles de nucléation et annihilation de vortex ou parois de domaines, pour des

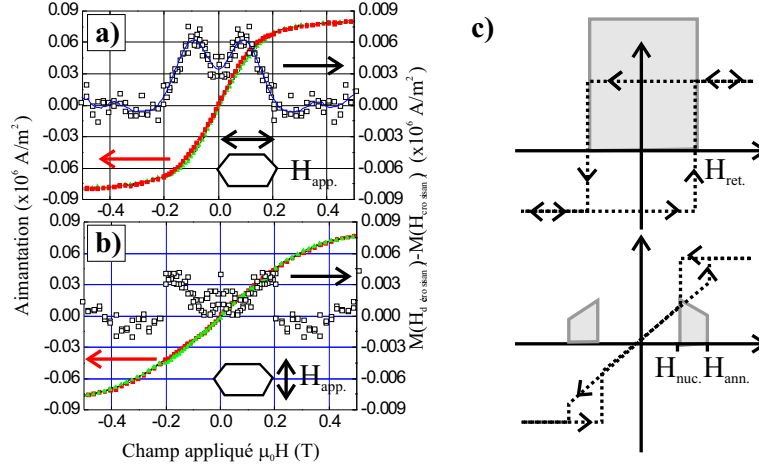


FIG. 5.3 – Cycles d’hystérésis obtenus par VSM à 300K, avec champ appliqué dans le plan de l’échantillon suivant les directions (a) [001] et (b)  $[1\bar{1}0]$ . Les courbes représentées par des carrés ouverts ( $\square$ ) correspondent à la différence de l’aimantation pour un champ croissant et un champ décroissant, qui illustre comme schématisé en (c) la présence d’hystérésis magnétique.

particules ou des couches minces présentant un champ de nucléation de vortex ou de parois faible et un champ démagnétisant important. La mesure effectuée ici sur une assemblée de particules prend en compte une certaine distribution de champs de nucléation et d’annihilation. Comme schématisé sur la Figure 5.3, on peut estimer grossièrement  $\mu_0 \left( \frac{H_{ann} - H_{nuc}}{2} \right) \approx 0.1T$ ,  $H_{nuc}$  et  $H_{ann}$  désignant respectivement les champs de nucléation et d’annihilation.

Les cycles d’hystérésis obtenus sur des échantillons avec des taux de couverture  $\Theta \in [1.5\text{nm}, 8\text{nm}]$ , c’est à dire pour des îlots dont les dimensions sont supérieures à  $450\text{nm} \times 250\text{nm} \times 40\text{nm}$ , présentent les mêmes caractéristiques. La Figure 5.4 présente en particulier les cycles d’hystérésis d’une assemblée d’îlots compacts, de dimensions moyennes  $550\text{nm} \times 300\text{nm} \times 65\text{nm}$  ( $\Theta \simeq 1.5\text{nm}$ ), qui seront étudiés plus en détail dans les sections suivantes.

### 5.1.2 Observation des configurations magnétiques à la rémanence par MFM

L’observation des configurations magnétiques à champ nul a été réalisée par microscopie à force magnétique (MFM), au DRFMC-CEA Grenoble, en collaboration avec Y. Samson. Toutes les configurations présentées correspondent à un état rémanent après saturation dans la direction facile [001]. Avant les mesures, la pointe est

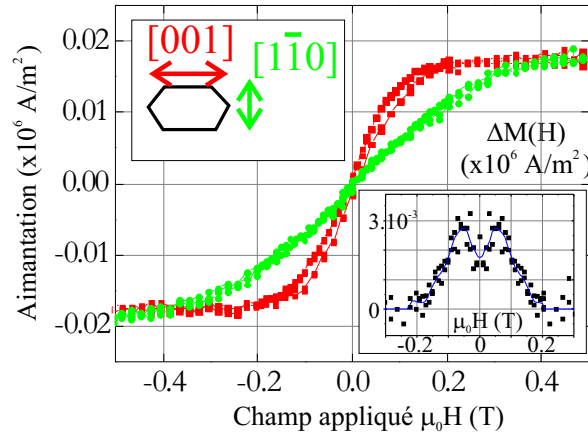


FIG. 5.4 – Cycles d’hystérésis (VSM, 300K) avec champ appliqué dans le plan de l’échantillon suivant les directions (a) [001] et (b) [110], pour un échantillon dont les dimensions moyennes sont  $550\text{nm} \times 350\text{nm} \times 65\text{nm}$ . En encart, différence entre l’aimantation mesurée en champ croissant et en champ décroissant pour [001].

aimantée verticalement.

La Figure 5.5 présente les images MFM obtenues sur un même échantillon pour lequel les dimensions moyennes des îlots sont  $1000\text{nm} \times 450\text{nm} \times 120\text{nm}$ . Les îlots biseautés forment une couche quasi-continue de  $\approx 1\text{nm}$  sur 80% de la surface. Le cycle d’hystérésis obtenu par VSM sur cet échantillon est comparable à celui de la Figure 5.1. L’aimantation est essentiellement dans le plan et, comme nous l’avons indiqué dans la section 4.2.2, le contraste MFM observé est principalement attribuable aux parois de domaine. On met en évidence deux types de configurations magnétiques qui comme le laissait présager les courbes d’aimantation, correspondent à des configurations multidomaines avec fermeture de flux. La configuration de la Figure 5.5d-e s’interprète comme schématisé Figure 5.5f : les domaines sont alignés parallèlement aux facettes, avec des parois de type Néel qui se développent à partir des arêtes de l’îlot et au centre une paroi de Bloch séparent deux domaines à  $180^\circ$ . La configuration de la Figure 5.5b n’a par contre pas pu être clairement identifiée. On retrouve aux extrémités de l’îlot des domaines parallèles au bord de l’échantillon avec un contraste clair/sombre au niveau des arêtes, caractéristique d’une paroi de Néel. Cependant, la configuration au centre de l’îlot n’a pas pu être interprétée.

La Figure 5.6 présente des images MFM obtenues dans des conditions similaires pour un échantillon présentant des îlots 3D compacts de dimensions moyennes  $550\text{nm} \times 350\text{nm} \times 65\text{nm}$ . Pour cet échantillon, nous avons également mis en évidence deux types de configurations en domaines à champ nul. On retrouve tout d’abord la configuration de type Bloch (cf. Figure 5.6b). La deuxième configuration présente un contraste de phase très différent qui peut s’interpréter comme schématisé sur la

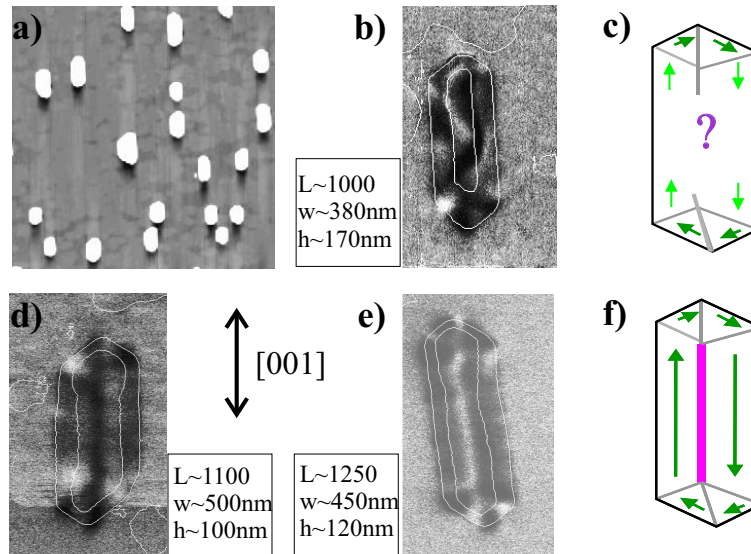


FIG. 5.5 – (a) Image AFM ( $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$ ) présentant la morphologie des îlots. La taille moyenne des îlots est  $1000\text{nm} \times 450\text{nm} \times 120\text{nm}$ . (b,d-e) Images MFM sur trois îlots présentant la même histoire magnétique qui met en évidence deux types de configurations en domaine. (c,f) schémas des configurations en domaines interprétées à partir des images MFM.

Figure 5.6f. Au niveau des pointes de l'îlot, les domaines sont toujours alignés parallèlement aux facettes. Par contre, la vorticit  des domaines dans les deux pointes est invers e. Au milieu de l'îlot, la paroi de Bloch est remplac e par deux vortex et des parois de type N eel, r esultant en une configuration magn etique de type diamant [Rave00]. Les images MFM n'ont  t  r ealis ees que sur un nombre restreint d' ilots (environ une dizaine), et il n'est donc pas exclu qu'il puisse exister d'autres configurations magn etiques   la r emanence.

Par ailleurs, on peut noter que les  ilots biseaut es et la couche quasi-continue de hauteur 1nm, pr esents entre les  ilots compacts, ne montrent pas de contraste magn etique.

Il est int eressant de trouver pour les  ilots de dimensions de l'ordre de  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$  les deux configurations magn etiques de type Bloch (ou Landau) et de type diamant, correspondant respectivement   la configuration de base et   une configuration composite du mod ele de Van den Berg, appliqu e   la g eom etrie de l' ilot (cf. section 4.1.2). Le mod ele de Van den Berg n'est th eoriquement applicable que dans l'approximation d'un mat eriel 2D, de facteur de qualit   $Q \ll 1$ , et pour des tailles d' ilot suffisamment grandes de telle sorte que les parois et vortex puissent  tre consid er es comme des singularit es lin eiques et ponctuelles respectivement. Pour

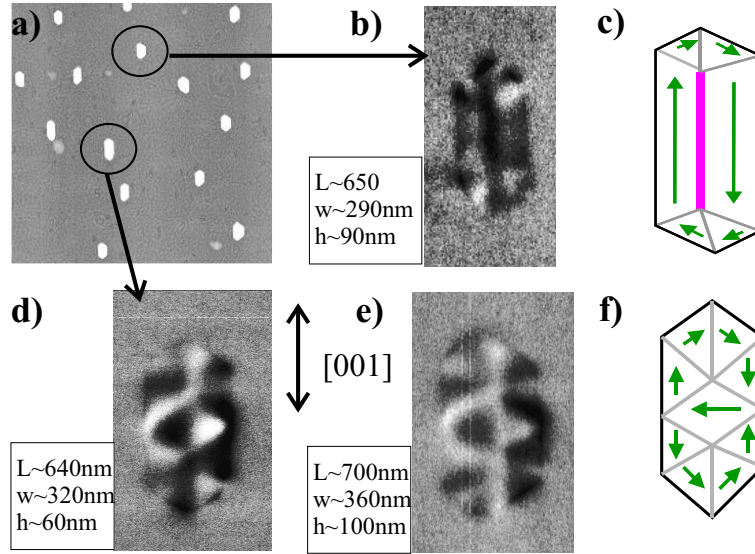


FIG. 5.6 – (a) Image AFM ( $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$ ) présentant la morphologie des îlots. La taille moyenne des îlots est  $550\text{nm} \times 350\text{nm} \times 65\text{nm}$ . (b,d-e) Images MFM sur trois îlots ayant été simultanément saturés suivant  $[001]$ , qui mettent en évidence deux types de configurations en domaine : une configuration de type Bloch (b-c) et une configuration de type diamant (d-f). (c,f) Schémas des configurations en domaines interprétées à partir des images MFM.

une description plus réelle de la configuration en domaine d'équilibre, prenant en compte en particulier le caractère 3D du système et une largeur de paroi finie, il faut faire appel à la simulation numérique. Dans la section suivante, nous présentons les résultats de simulations obtenus sur ces systèmes.

## 5.2 Simulations micromagnétiques pour $H_{\text{app.}}//\text{axe facile}$

### 5.2.1 Hypothèses pour les simulations micromagnétiques

Pour les simulations micromagnétiques, nous avons négligé l'effet des bords inclinés des îlots 3D compacts pour considérer une forme plus simple avec des bords droits : l'hexaplot (cf. Figure 5.7).

Les propriétés intrinsèques de l'hexaplot ont été assimilées aux propriétés du fer massif, conformément aux résultats des mesures magnétiques macroscopiques. Ainsi, l'aimantation à saturation est prise égale à  $M_s = 1.750 \times 10^6 \text{ A/m}$ , la constante d'échange est  $A = 2 \times 10^{-11} \text{ J/m}$ , et nous considérons une constante d'anisotropie

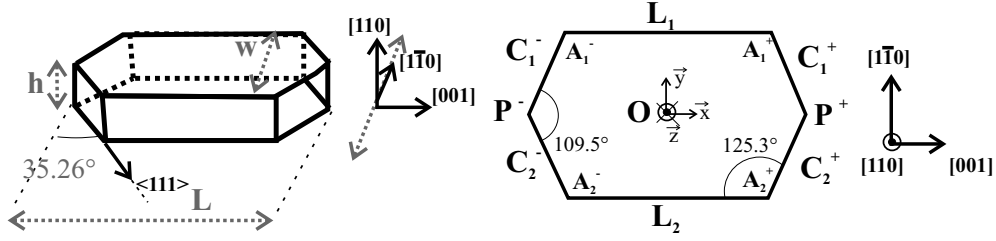


FIG. 5.7 – Représentations schématiques de l’hexaplot et notations utilisées pour décrire les structures magnétiques :  $C_i^\pm$  et  $L_i$  définissent les côtés de l’hexaplot,  $P^\pm$  et  $A_i^\pm$  se rapportent aux coins. Les indices 1 et 2 correspondent à  $y > 0$  et à  $y < 0$  respectivement, et les exposants + et -, à  $x > 0$  et à  $x < 0$  respectivement.

du fer cubique favorisant les directions  $\langle 001 \rangle$  du cristal avec  $K_1 = 4.8 \times 10^4 \text{ J/m}^3$  [Escudier73]. Les longueurs caractéristiques calculées à partir de ces valeurs sont  $\ell_{ech} = \pi \sqrt{\frac{A}{\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2}} \simeq 10 \text{ nm}$  et  $\ell_{Bloch} = \pi \sqrt{\frac{A}{K}} \simeq 60 \text{ nm}$ . De manière à décrire correctement le comportement micromagnétique du système, il est nécessaire que le pas de maillage soit inférieur à la longueur d’échange [Kevorkian98, Rave00]. Nous avons discrétisé le système avec un maillage cubique de 5 nm de côté.

Nous avons considéré pour les dimensions de l’hexaplot  $L = 600 \text{ nm}$ ,  $w = 300 \text{ nm}$  et  $h = 60 \text{ nm}$ , reproduisant ainsi les dimensions des îlots sur lesquels les configurations magnétiques Bloch et diamant ont été observées par MFM (cf. Figure 5.6). Le choix de ces dimensions a également été imposé par des limitations dans la taille maximum accessible à la simulation, compte tenu des capacités de calcul et du temps de calcul dont nous disposons. Pour donner un ordre de grandeur, une durée de l’ordre d’une semaine est nécessaire pour réaliser la simulation d’un demi cycle d’hystérésis avec ces dimensions de l’hexaplot.

Le champ magnétique est appliqué suivant l’axe facile  $[001]$  des îlots, parallèlement à la grande longueur (cf. Figure 5.7). Il faut noter qu’une symétrie excessive du système peut induire numériquement un blocage du retournement [Kevorkian98]. Pour se préserver de ce problème, nous avons appliqué un champ décalé dans le plan  $(O \vec{x} \vec{y})$  de  $+0.1^\circ$  par rapport à l’axe facile  $[001]$ .

### 5.2.2 Simulation pour $H_{app.} // [001]$

#### Courbe d’aimantation

Le point de départ de la simulation est la saturation de l’hexaplot parallèlement à l’axe  $[001]$  (avec on le rappelle un décalage de  $+0.1^\circ$ ). La configuration d’équilibre statique a été calculée pour différents champs appliqués décroissants jusqu’à la saturation dans le sens opposé. La Figure 5.8a présente le cycle  $M_x(H_{app})$  déduit des simulations.

On retrouve un cycle d'hystérésis comparable à celui mis en évidence expérimentalement sur une assemblée d'îlots de taille équivalente. Les contributions réversibles aux faibles champs se superposent. Par contre, l'hystérésis donné par la simulation est bien plus important que l'hystérésis mesuré par VSM à 300K (cf. Figure 5.8b). Ceci s'explique d'une part, parce qu'expérimentalement, un défaut de la particule, la possible influence des îlots biseautés sous-jacents, ou les fluctuations thermiques permettent une nucléation ou une annihilation des vortex ou des parois plus facile. Mais d'autre part, il faut tenir compte ici du fait que les courbes expérimentales présentent une certaine distribution de champs de nucléation et d'annihilation. Expérimentalement, l'hystérésis magnétique s'étale sur 0.2T, avec un maximum centré environ sur 0.06T (cf. Figure 5.8b). Pour la simulation on trouve  $\mu_0 \left( \frac{H_{nuc} - H_{ann}}{2} \right) \approx 0.08$ , ce qui est en relativement bon accord avec les résultats expérimentaux.

Dans la suite de ce travail, nous nous sommes restreint à une étude du système entre la saturation ( $\mu_0 H_{app.} = +1T$ ) et la rémanence ( $\mu_0 H_{app.} = 0T$ ).

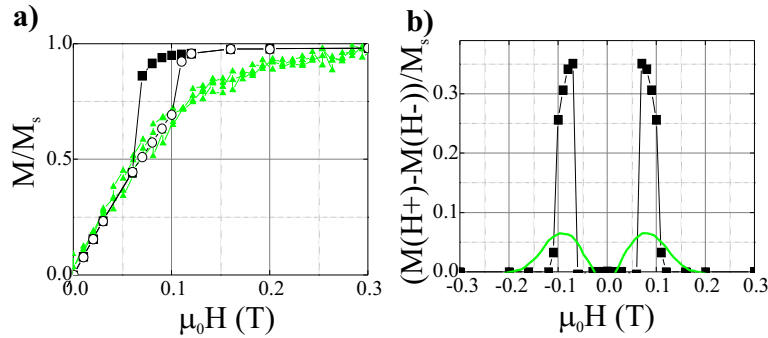


FIG. 5.8 – (a) Cycles d'hystérésis simulés (carrés pleins : champ décroissant, ronds vides : champ croissant), les triangles gris correspondent aux mesures par VSM à 300K sur une assemblée de particules (cf. Figure 5.4). (b) Comparaison des hystérésis (carrés pleins : simulation, ligne grise : interpolation sur les mesures VSM).

### Détail de la configuration à la rémanence

A champ nul, l'aimantation résultante est nulle, ce qui augure d'une configuration magnétique avec fermeture de flux. La Figure 5.9a décrit la configuration micromagnétique obtenue à la rémanence. On retrouve la configuration de type *diamant* qui correspond à une des catégories de configuration magnétique observée par MFM (cf. Figure 5.6).

La structure diamant présente deux vortex, de vorticité opposée, qui sont positionnés de manière symétrique par rapport au centre de l'hexaplot (point O, cf. Figure 5.7). La configuration adoptée est typique d'un système à faible anisotropie

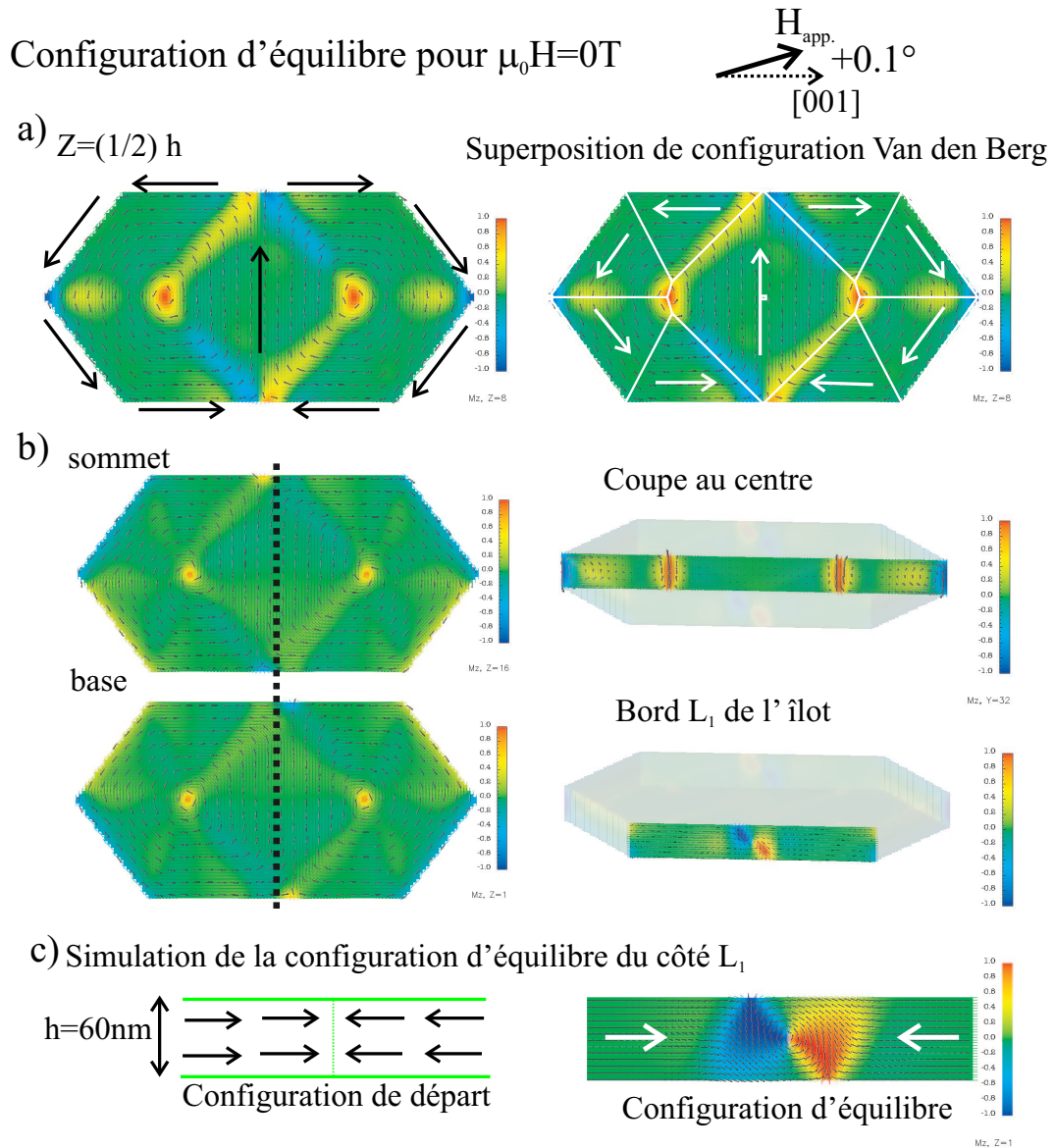


FIG. 5.9 – Présentation de la configuration magnétique d'équilibre à la rémanence obtenue par simulation numérique lors d'un retour progressif en champ depuis la saturation à  $H_{app.} = 1T$ . (a) Coupe au niveau du plan médian de l'hexaplot et comparaison avec une structure d'équilibre composite prévue par le modèle de Van den Berg. (b) Configurations magnétiques au sommet et à la base de l'hexaplot et coupes entre  $P^-$  et  $P^+$ , et le long du côté  $L_2$ . (c) Résultat d'une simulation sur une bande ultra-fine de Fe de hauteur 60nm, pour déterminer la configuration d'équilibre entre deux domaines orientés tête-bêche. Le pas de maillage est de 5nm dans la longueur de la bande, et 2.5nm dans la largeur et l'épaisseur.

( $Q \simeq 2.5 \times 10^{-2}$ ) avec des domaines préférentiellement alignés parallèlement aux faces et aux arêtes de l'îlot. Sur la Figure 5.9a, nous présentons également la superposition de la configuration micromagnétique calculée dans le plan médian de l'hexaplot, et la construction composite 2D de Van den Berg correspondante. Le modèle de Van den Berg est démontré dans l'approximation d'une structure 2D, présentant des dimensions grandes devant la largeur des parois (cf. section 4.1.2 et [van den Berg85]). Le cas présenté ici considère une structure 3D, avec des dimensions qui sont proches de  $\ell_{Bloch} \approx 60\text{nm}$ . On trouve cependant un très bon accord pour la position des vortex et des parois de domaines. On montre ici que l'approche de Van den Berg est encore bien valable en dehors des conditions supposées d'applicabilité. La structure en domaines adoptée dans l'hexaplot est donc guidée par la minimisation de l'énergie dipolaire qui est le terme d'énergie prédominant pour ce système (cf. paragraphe 5.1.1).

Comme on peut le voir en comparant les configurations de la Figure 5.9b, la structure diamant n'est pas exactement reproduite en dehors du plan médian. La position où se rejoignent les parois de Néel à  $90^\circ$  sur  $L_1$  et  $L_2$ , n'est pas identique sur le sommet et sur la base de l'hexaplot. La dissymétrie par rapport au plan médian peut se comprendre par la nécessité de générer sur les côtés  $L_1$  et  $L_2$  de l'hexaplot, une paroi entre deux domaines à  $180^\circ$  avec un coût en énergie dipolaire minimal. Pour identifier si la structure adoptée par la paroi correspond effectivement à un état d'équilibre, nous avons réalisé une simulation numérique sur une bande de Fe de hauteur  $h = 60\text{nm}$  mais d'épaisseur faible, reproduisant les faces  $L_1$  ou  $L_2$  de l'hexaplot. Nous n'avons certes pas la même géométrie mais l'aimantation ressent de manière similaire le besoin de minimiser l'énergie dipolaire en ayant le moins de moments perpendiculaire à la face  $L_1$  ou  $L_2$ . La configuration de départ correspond à deux domaines d'aimantation tête-bêche. Du fait de l'épaisseur réduite de la bande de Fe (2 cellules de maillage, soit  $5\text{nm}$ ), l'aimantation est contrainte à rester dans le plan de la bande de Fe. La configuration d'équilibre obtenue après la relaxation du système à champ nul reproduit la configuration observée sur les côtés  $L_1$  et  $L_2$  de l'hexaplot. Cette simulation montre que la coexistence sur les côtés de l'hexaplot de domaines d'aimantation opposée peut effectivement être accordée par la formation d'une "paroi 2D, avec fermeture de flux", qui permet d'expliquer la légère différence des configurations magnétiques de part et d'autre du plan médian de l'hexaplot.

Par ailleurs, pour vérifier que l'interprétation du contraste de l'image MFM présentée sur la Figure 5.6 correspond effectivement à la structure diamant obtenue par la simulation, nous avons simulé une image "MFM" de la configuration magnétique diamant issue de la simulation. Pour cela, nous avons déterminé numériquement les cartes des dérivées première et seconde ( $\frac{dH_z}{dz}$  et  $\frac{d^2H_z}{dz^2}$ ), du champ de fuite généré par cette configuration magnétique, à une hauteur de vol constante ( $30\text{nm}$ ) au dessus de l'hexaplot. Le résultat du calcul est présenté sur la Figure 5.10. Les images "MFM"

simulées reproduisent qualitativement le contraste observé expérimentalement. Il faut noter que  $\frac{dH}{dz}(x, y)$  et  $\frac{d^2H}{dz^2}(x, y)$  présentent des contrastes inversés au niveau des parois. Que la pointe soit assimilable à un monopole ou à un bipole n'a pas de conséquence ici pour l'interprétation des configurations du fait de leur symétrie. Par ailleurs, on remarque que les parois de domaines sont moins larges qu'expérimentalement, ce qui peut s'expliquer par la taille non ponctuelle de la pointe magnétique.

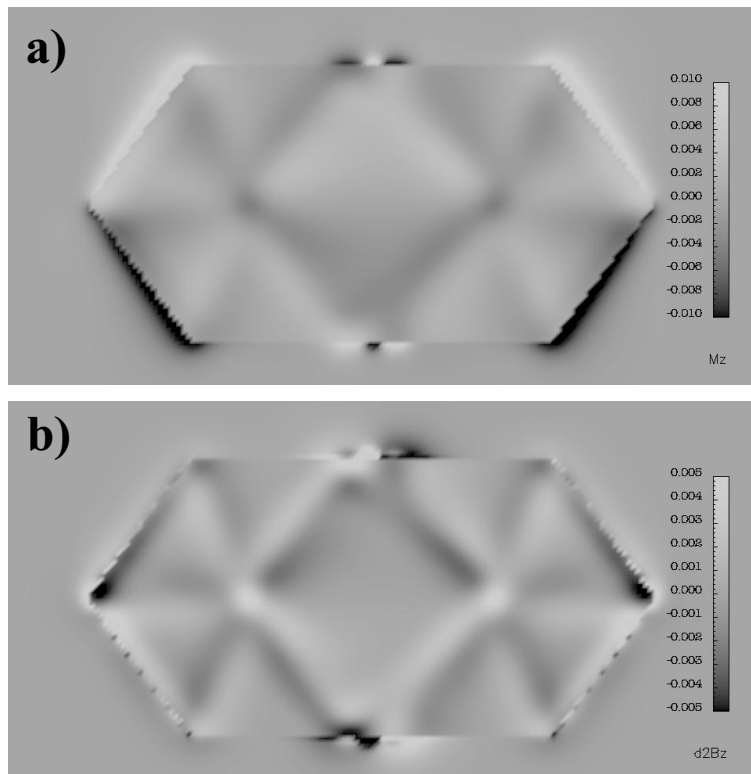


FIG. 5.10 – Images "MFM" simulées sur la configuration diamant, correspondant aux cartes de dérivées du champ de fuite, (a)  $\frac{dH}{dz}(z)$  et (b)  $\frac{d^2H}{dz^2}(z)$ , à une hauteur de vol constante de 30nm au dessus de l'hexaplot.

En définitive, la configuration micromagnétique de type diamant issue des simulations, reproduit très bien une des configurations en domaines observées expérimentalement à la rémanence. Nous allons maintenant décrire à partir des résultats de la simulation micromagnétique les étapes qui caractérisent le passage d'une configuration uniforme à la saturation, vers la configuration diamant à la rémanence.



### De l'état saturé à la rémanence

La Figure 5.11 représente les configurations micromagnétiques dans le plan médian de l'hexaplot, calculées pour différents champs appliqués décroissants. Au cours de l'évolution d'un état uniformément aimanté à  $\mu_0 H_{app.} = 1T$  vers la configuration diamant pour  $\mu_0 H_{app.} = 0T$ , on peut distinguer 3 étapes.

#### ► Étape 1

La première étape correspond à l'alignement des moments situés à proximité des bords de l'hexaplot parallèlement à ces derniers. Cette rotation continue et réversible de l'orientation des moments permet de diminuer les charges de surface et de réduire de ce fait l'énergie dipolaire. Ce processus intervient déjà pour  $\mu_0 H_{app.} = 1T$  et jusqu'à  $\mu_0 H_{app.} = 0.09T$ , et se traduit sur la courbe d'aimantation par une faible diminution de  $M_x/M_s$ . On note que les flux magnétiques rentrant et sortant sont alors localisés au niveau des pointes  $P^-$  et  $P^+$  respectivement. En contrepartie de la réduction de charge de surface, cette transformation s'accompagne de la formation de charges de volume, qui contribuent à l'énergie dipolaire, et à un coût en énergie d'échange. En particulier au niveau des pointes de l'îlot on peut voir que l'orientation des moments varie continûment de  $+55^\circ$  à  $-55^\circ$  par rapport à la direction du champ appliqué.

Le passage de la configuration observée à  $\mu_0 H_{app.} = 0.09T$  à une structure avec fermeture de flux ne peut pas se faire de manière continue, mais nécessite la réalisation d'événements irréversibles correspondant à l'introduction de vortex dans l'hexaplot (étape 2).

#### ► Étape 2

La deuxième étape a lieu entre  $\mu_0 H_{app.} = 0.08T$  et  $\mu_0 H_{app.} = 0.06T$ . Elle se caractérise par une brisure de symétrie entre les régions ( $y > 0$ ) et ( $y < 0$ ) de chaque pointe. Elle correspond à la nucléation simultanée de deux vortex positionnés de manière symétrique par rapport au centre de l'hexaplot, et présentant deux vorticités opposées. Le processus de nucléation démarre à  $\mu_0 H_{app.} = 0.08T$  avec l'apparition autour des coins  $A_1^-$  et  $A_2^+$  de zones pour lesquelles l'aimantation sort du plan ( $M_z > 0$ ), et autour desquelles il existe une variation circulaire de l'aimantation dans le sens horaire dans la proximité de  $A_1^-$  et dans le sens anti-horaire dans la proximité de  $A_2^+$ . Lorsque le champ appliqué est diminué, cette zone de nucléation ancrée sur  $A_1^-$  ( $A_2^+$ ) se détache progressivement de  $C_1^-$  (respectivement  $C_2^+$ ) puis de manière soudaine pour  $\mu_0 H_{app.} = 0.06T$ . Le saut d'aimantation observé sur la courbe d'aimantation  $M_x(H_{app.})$  pour  $\mu_0 H_{app.} = 0.06T$ , correspond à l'introduction simultanée de ces vortex à l'intérieur de l'hexaplot. Avec le développement des vortex, on

constate la formation d'une ondulation de l'aimantation, visible notamment par sa composant  $M_z$ , qui se propage sur une courbe démarrant au niveau des zones de nucléation jusqu'à atteindre le bord opposé de l'hexaplot. Ces ondulations suivant  $z$  sont présentes principalement là où les variations de la direction de l'aimantation dans le plan sont importantes. Elles doivent permettre de compenser, du fait de variations  $dM_z/dz$ , une partie des charges de volume créées par les variations rapides de l'aimantation dans le plan, de telle sorte que  $\rho = -dM_x/dx - dM_y/dy + dM_z/dz$  soit minimum.

A l'issue de l'étape 2, on obtient une configuration en domaine avec fermeture de flux, correspondant à une structure diamant déformée, avec deux vortex pointant suivant  $z > 0$  et de vorticit   oppos  e.

### ►   tape 3

La troisi  me   tape est    nouveau reli  e    une   volution r  versible de l'aimantation. De  $\mu_0 H_{app.} = 0.06T$      $\mu_0 H_{app.} = 0T$ , les vortex se d  placent de mani  re r  versible vers les lieux qui permettent de minimiser l'  nergie totale du syst  me, en fonction du champ appliqu    $H_{app.}$ . Sur la courbe d'aimantation, cette derni  re   tape correspond    la variation quasi-rectiligne observ  e pour les champs faibles (cf. Figure 5.8).

Les simulations micromagn  tiques que nous venons de pr  senter nous permettent de suivre l'  volution de l'aimantation dans l'hexaplot d'un   tat uniform  ment aimant   vers un   tat avec fermeture de flux    champ nul. Le r  sultat de la simulation est l  gitim  e par le fait que la configuration diamant obtenue est d'une part, observ  e exp  rimentalement par MFM et d'autre part, correspond    une configuration stable pr  dite par le mod  le de Van den Berg, dans l'approximation d'un syst  me 2D id  alement doux, pr  sentant la g  om  trie de l'hexaplot.

Cependant, exp  rimentalement on observe une deuxi  me cat  gorie de structure en domaine pour les   lots de  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$  : la configuration Bloch. Cette derni  re est   galement pr  dite par une approche de Van den Berg (cf. section 4.1.2). Qui plus est, elle correspond    la structure de base de la construction de Van den Berg appliqu  e    la g  om  trie de l'hexaplot, alors que la structure diamant est une structure composite. Il est g  n  ralement accept   que la configuration la plus stable pour des structures compactes est probablement la structure de base, c'  st    dire la configuration de Bloch [Hubert98][section 3.3B].

Pour le v  rifier, il nous faut calculer la configuration d'  quilibre associ  e    la structure Bloch.

### 5.2.3 Comparaison énergétique des structures diamant et Bloch

Dans cette sous-section, nous cherchons à comparer les énergies des configurations diamant et Bloch pour un hexaplot de Fe dont les dimensions sont  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$ .

La configuration magnétique de type Bloch a été obtenue par simulation numérique, en laissant relaxer à champ nul, une structure en domaines initiale imitant la structure Bloch. Nous avons utilisé pour la structure initiale une configuration avec l'aimantation dans le plan de l'échantillon et parallèle aux bords de l'hexaplot; au centre la paroi de Bloch est définie dans l'intervalle  $[100\text{nm} < x < 100\text{nm}, (-50\text{nm} < y < 50\text{nm}, 0 < z < h]$  par  $(M_x(x, y) = y/50, M_y(x, y) = 0, M_z(x, y) = 1 - (y/50)^2)$ , avec  $y$  exprimé en nm. Le résultat de la simulation est présenté sur la Figure 5.12.

#### Configuration Bloch d'équilibre pour $\mu_0 H = 0\text{T}$

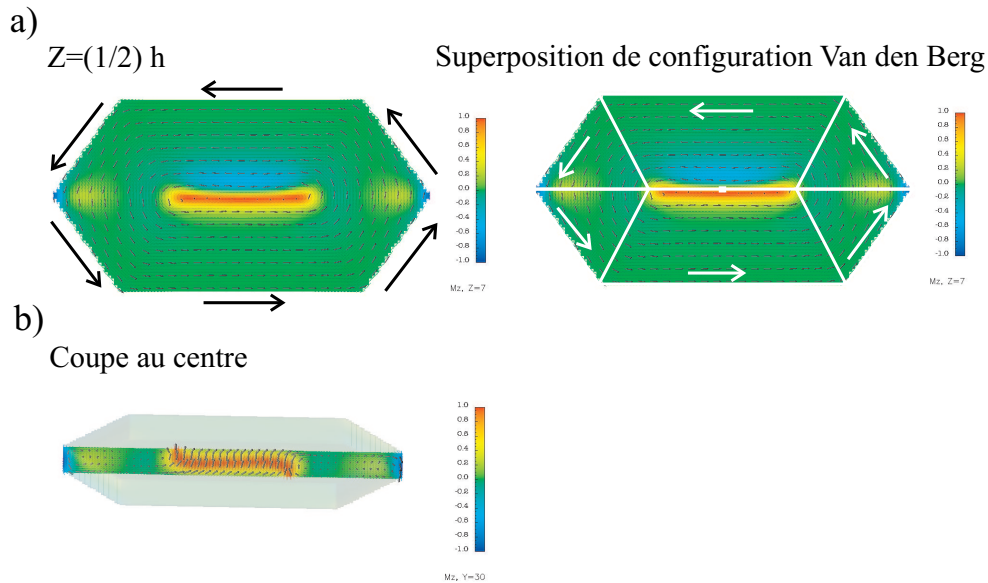


FIG. 5.12 – Configuration statique d'équilibre obtenue par simulation numérique en laissant relaxer à champ nul une structure en domaines initiale imitant la structure Bloch. (a) Coupe au niveau du plan médian de l'hexaplot et comparaison avec la structure d'équilibre de base prévue par le modèle de Van den Berg. (b) Section verticale au centre de l'hexaplot montrant la structure de la paroi de vortex.

Pour minimiser l'énergie dipolaire, l'aimantation s'aligne bien parallèlement aux bords de l'hexaplot. Dans le plan médian, la position des parois de Néel et d'une paroi assimilable à une paroi de Bloch se superpose parfaitement avec le lieu des

singularités de la structure de base issue du modèle de Van den Berg. Il faut noter qu'en dehors du plan médian, cette structure avec une paroi de Bloch, qui présente une composante  $M_z$  non nulle, n'est pas favorable du point de vue de l'énergie dipolaire. A proximité de la base et du sommet de l'hexaplot, elle est remplacée par une paroi de Néel (Néel cap) et un vortex. La coupe de la structure de Bloch suivant  $(0 \vec{x} \vec{z})$  révèle que la paroi au centre de l'îlot correspond en fait à un unique vortex, déformé, qui traverse l'hexaplot en son centre, et en définitive ne génère à la base et au sommet de l'îlot qu'une singularité presque ponctuelle (cf. Figure 5.12b). Ce type de parois est typique de couches minces ou bandes de matériaux de facteur de qualité  $Q < 1$  et pour des épaisseurs supérieures à  $\ell_{Bloch}$  [Hubert98][section 3.6]. Elles sont appelées parois de Bloch asymétriques ou parois de vortex [Hubert98][section 3.6].

L'image "MFM" simulée (plus exactement la carte  $d^2Hz/dz^2$ ) montre que le contraste résultant de ce vortex déformé est similaire à celui d'une paroi de Bloch. On reproduit qualitativement l'image MFM expérimentale (cf.  $d^2Hz/dz^2$  et Figure 5.6b).

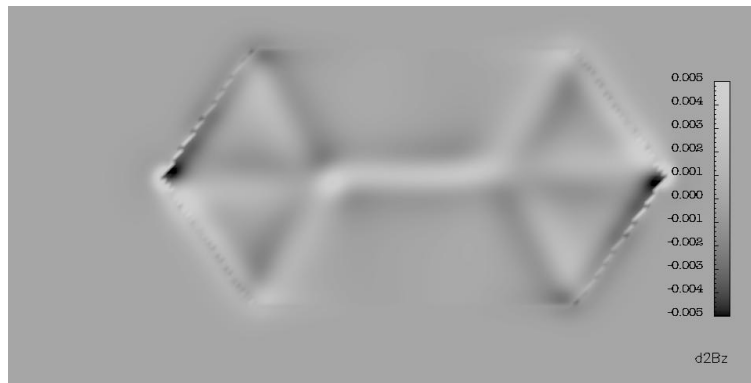


FIG. 5.13 – Carte de  $d^2Hz/dz^2$  calculée à partir de la configuration micromagnétique de la Figure 5.12 avec une hauteur de vol au dessus de l'îlot de 30nm à comparer avec l'image MFM de la Figure 5.6b.

### Comparaison des densités d'énergie des configurations Bloch et diamant

Nous avons vu que les deux configurations Bloch et diamant correspondent à des configurations d'équilibre pour l'hexaplot de dimensions  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$ . A partir des configurations d'équilibre simulées, nous pouvons calculer les énergies totales et les différents termes d'énergie magnétique pour ces deux configurations (cf. Tableau 5.2). On constate que la structure Bloch est énergétiquement plus favorable que la structure diamant, pour l'ensemble des densités d'énergie : totale, échange, anisotropie et dipolaire. Ce résultat confirme les arguments associés au modèle de

TAB. 5.2 – Comparaison des énergies des configurations de type Bloch et diamant

Configuration	$E_{tot}(\text{J/m}^3)$	$E_{echange}(\text{J/m}^3)$	$E_d(\text{J/m}^3)$	$E_{anisotropie}(\text{J/m}^3)$
Diamant	$3.382 \times 10^6$	$1.557 \times 10^6$	$0.886 \times 10^6$	$0.938 \times 10^6$
Bloch	$2.940 \times 10^6$	$1.498 \times 10^6$	$0.748 \times 10^6$	$0.694 \times 10^6$

Van den Berg selon lesquels la configuration la plus stable, pour un objet simple et compact, est le plus probablement la structure de base [Hubert98][section 3.3B].

En conséquence, nous vérifions ici que malgré une meilleure minimisation des énergies magnétiques pour la structure de type Bloch, la structure diamant est obtenue lors des simulations de retour en champ. On peut dès lors se demander quelle est la raison pour laquelle le système évolue depuis la saturation vers une structure diamant.

Revenons sur l'analyse de l'évolution des configurations magnétiques avec le champ décroissant qui conduit à la formation d'une structure diamant (cf. section 5.2 et Figure 5.11). On observe qu'à toutes les étapes, la symétrie  $\vec{M}(x, y) = \vec{M}(-x, -y)$  est conservée dans le plan médian de l'hexaplot. Par contre, la configuration d'équilibre Bloch présente la relation de symétrie opposée :  $\vec{M}(x, y) = -\vec{M}(-x, -y)$ . Il semblerait que la haute symétrie du système puisse imposer la configuration de type diamant qui conserve une partie de la symétrie initiale plutôt que la structure Bloch qui nécessite une brisure de symétrie supplémentaire. Pour tester cette hypothèse, nous avons considéré une simulation similaire à celle présentée au dessus pour laquelle nous imposons numériquement une perturbation qui dissymétrise le système par rapport au centre de l'hexaplot.

#### 5.2.4 Effet du tilt de champ, dissymétrisation

Pour éviter le problème de blocage numérique du retournement de l'aimantation, nous avons introduit dans les simulations précédentes le tilt simple, ou décalage du champ appliqué, de  $+0.1^\circ$  par rapport à l'axe de facile aimantation. Ce tilt est symétrique par rapport au centre O de l'hexaplot (on a en effet  $\vec{H}(x, y) = \vec{H}(-x, -y)$ ), il ne perturbe pas la symétrie du système. Nous considérons maintenant une autre manière d'introduire une dissymétrie au problème, en introduisant un décalage du champ magnétique appliqué de  $+0.1^\circ$  pour  $x > 0$  et  $-0.1^\circ$  pour  $x < 0$ . Pour la partie de l'hexaplot  $x > 0$ ,  $\vec{H}_{app.}$  est inchangé par rapport à la simulation précédente, mais par contre pour la partie de l'hexaplot  $x < 0$ ,  $\vec{H}_{app.}$  est décalé de  $-0.2^\circ$ . Cette modification correspond en définitive qu'à une très faible perturbation. Dans la suite de ce travail, nous distinguerons les deux cas de simulations en appelant

tilt1, le cas traité dans la section précédente, et tilt2, le cas d'un décalage de  $\vec{H}_{app.}$  différent pour  $x > 0$  et  $x < 0$ .

Le point de départ de la simulation est la saturation de l'hexaplot parallèlement à la direction facile [001] (+tilt2). L'amplitude du champ appliqué est ensuite réduite pas à pas jusqu'à  $H_{app.} = 0$ , avec à chaque étape la détermination de la configuration micromagnétique d'équilibre. La courbe d'aimantation  $M_x(H_{app.})$  ainsi obtenue est représentée sur la Figure 5.14. On constate que la perturbation apportée par le tilt2 par rapport aux simulations avec le tilt1 est à première vue négligeable pour les courbes d'aimantation qui se superposent.

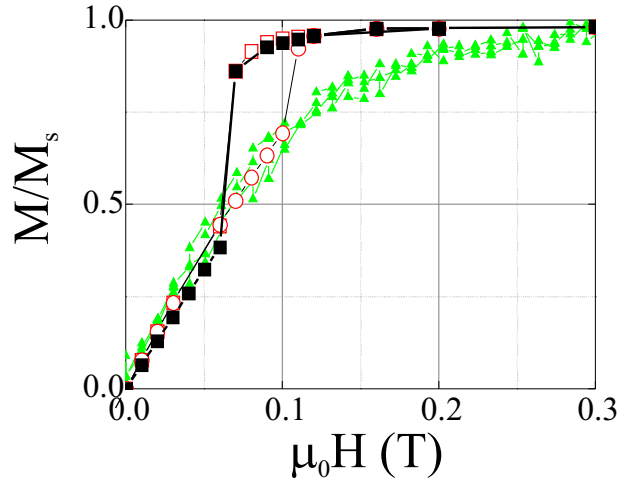


FIG. 5.14 – Cycle d'hystérésis simulé pour l'application d'un tilt de  $+0.1^\circ$  pour  $x > 0$  et de  $-0.1^\circ$  pour  $x < 0$  (■), comparés au cycle d'hystérésis obtenu dans le cas de l'application d'un tilt de  $+0.1^\circ$  constant (○). La courbe avec les triangles gris rappelle le cycle d'hystérésis obtenu par VSM sur une assemblée de particules de dimensions équivalentes

### De l'état saturé à la rémanence

Regardons à présent sur la Figure 5.15, l'évolution des configurations magnétiques adoptées au cours du retour en champ depuis la saturation à  $\mu_0 H_{app.} = 1T$  jusqu'à la rémanence, lorsqu'est utilisé le tilt2. Pour comparaison, nous rappelons que l'évolution des configurations magnétiques avec le tilt1 sont données sur la Figure 5.11.

On retrouve les trois mêmes étapes pour décrire l'évolution d'une configuration uniforme vers une configuration avec fermeture de flux à la rémanence :

► **Étape 1**

La première étape, pour  $\mu_0 H_{app.} = 1T$  à  $\mu_0 H_{app.} = 0.09T$ , correspond à la rotation progressive et réversible de l'aimantation pour s'aligner le long des bords de l'îlot. A  $\mu_0 H_{app.} = 0.09T$ , la configuration magnétique adoptée est quasi-identique avec le tilt1 et le tilt2.

► **Étape 2**

La deuxième étape correspond à l'introduction dans l'hexaplot de vortex qui permettent de passer à une configuration magnétique avec fermeture de flux. Cette étape débute à  $\mu_0 H_{app.} = 0.08T$  et se termine à  $\mu_0 H_{app.} = 0.06T$ .

Dès  $\mu_0 H_{app.} = 0.08T$  on observe une différence de comportement entre le tilt1 et le tilt2. En fait, ces différences sont localisées uniquement dans la partie où l'orientation du tilt a été modifiée. Elles se traduisent par l'apparition de la zone de nucléation de vortex au niveau du coin  $A_2^-$ , alors qu'elle se faisait sur  $A_1^-$  avec le tilt1. Ce choix de côté de nucléation entraîne la brisure de symétrie par rapport au centre de l'hexaplot :  $\vec{M}(x, y) \neq \vec{M}(-x, -y)$ . Il faut noter que la vorticité et l'orientation des moments sont également inversés pour  $x < 0$ .

La suite du processus de nucléation est similaire pour tilt1 ou tilt2 : après la formation d'une zone de nucléation sur un coin, ce dernier s'élargit jusqu'à pouvoir, au champ de nucléation  $H_{nuc}$ , quitter les cotés de l'îlot et s'établir à l'intérieur de l'hexaplot. Nous observons qu'avec la présence des vortex, il existe encore des ondulations de l'aimantation en particulier suivant la composante  $M_z$  et également proche du centre de l'îlot pour  $x \approx 0$ . On souligne que le contraste observé sur la Figure 5.15(0.06T, iter. 17400) ne correspond pas à un vortex mais à une ondulation des moments avec une forte composante verticale au niveau du contraste.

Au final de la seconde étape, la configuration d'équilibre pour  $\mu_0 H_{app.} = 0.06T$  présente une structure en domaine assimilable à un structure de type Bloch (cf. section 5.2.3 et Figure 5.12). Les deux vortex introduits présentant la même vorticité, ils ne vont pas se repousser mais tendre à s'associer pour ne former qu'un seul vortex, où plus exactement une paroi de vortex. A l'approche de la surface et de la base de l'îlot, il se forme comme pour la configuration d'équilibre de Bloch (cf. Figure 5.12), une paroi de Néel (Néel cap) et un vortex positionné à  $x < 0$  au sommet, et à  $x > 0$  sur la base de l'hexaplot. Par contre, du fait de l'orientation initiale des zones de nucléation, les deux vortex de surface sont rentrant de chaque côté de la paroi de vortex, ce qui impose un retournement de l'aimantation dans le coeur de la paroi de vortex. La paroi de vortex alors générée présente en son coeur des modifications d'orientation des moments. Il est vraisemblable que si l'orientation des zones de nucléation

avait été identiques, on aurait pu former une paroi de vortex similaire à celle obtenue lors du calcul de la structure d'équilibre de la configuration de Bloch (section 5.2.3).

### ► Étape 3

La troisième étape est similaire au cas du tilt1. Elle correspond au déplacement réversible de la paroi de vortex générée sur la position qui permet de minimiser l'énergie magnétique du système compte tenu du champ magnétique extérieur appliqué. Pour  $H_{\text{app.}} = 0$ , la paroi de vortex se positionne au centre de l'îlot et on retrouve l'accord observé dans la section 5.2.3 entre la position des parois de Néel et de vortex avec les lieux des parois données à partir du modèle de Van den Berg.

## 5.2.5 Bilan sur les simulations avec $H_{\text{app.}}//[001]$

Les deux structures en domaines, diamant et Bloch, observées expérimentalement correspondent à des configurations d'équilibre pour un hexaplot de  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$ . La comparaison des énergies magnétiques des deux configurations d'équilibre à la rémanence a montré que la configuration Bloch est la plus stable. Pour autant, expérimentalement on observe les deux configurations. Qu'est ce qui domine l'évolution depuis l'état saturé suivant  $[001]$ , vers une de ces deux configurations magnétiques ?

Nous avons montré par les simulations micromagnétiques que la bifurcation vers l'une ou l'autre des configurations est décidée au début du processus de nucléation par le choix d'une brisure de symétrie (étape 2). La nucléation correspond à l'introduction simultanée de deux vortex sur 1 des 2 côtés de chaque pointe de l'hexaplot. Il faut noter que la nucléation pour la pointe  $x < 0$  semble indépendante de la nucléation de la pointe correspondant à  $x > 0$ . Le choix du côté sur lequel débute la nucléation peut être modifié par une perturbation, comme par exemple par une modification volontaire du tilt de champ magnétique appliqué. Alors que le tilt est initialement introduit pour éviter le blocage numérique du retournement du fait de la symétrie élevée du système, il s'avère qu'il peut avoir également un rôle dans le choix du côté de nucléation. La Figure 5.16 résume les différents choix de nucléation possible en fonction de l'orientation du tilt.

Ensuite, si pour un îlot les vortex nucléent en deux positions symétriques par rapport au centre de l'îlot, ils présenteront alors des vorticités opposées, et la configuration résultante sera la structure diamant. Si par contre, les vortex nucléent du même côté, ils ont alors la même vortacité et conduiront à la formation d'une

Simulation avec décalage de  $+0.1^\circ$  pour  $(x>0)$  et  $-0.1^\circ$  pour  $(x<0)$

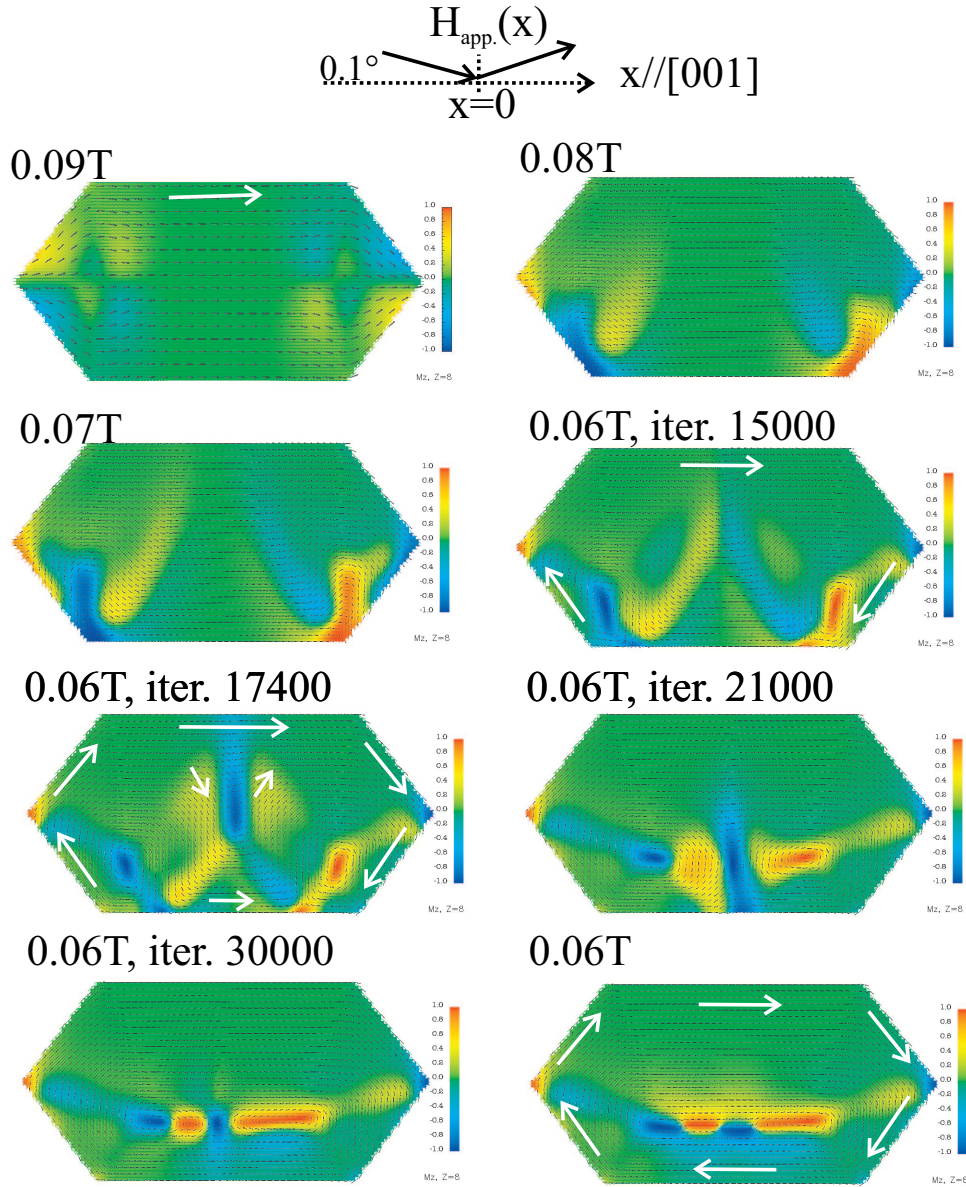


FIG. 5.15 – Evolution des configurations micromagnétiques dans le plan médian de l'hexaplot calculées pour des champs appliqués décroissants, avec une désorientation du champ par rapport à l'axe  $x//[001]$  de  $+0.1^\circ$  pour  $x > 0$  et de  $-0.1^\circ$  pour  $x < 0$ . Les images pour lesquelles sont indiquées un numéro d'itérations montrent l'évolution pseudodynamique à 0.06T au cours de laquelle il se forme une paroi de vortex.

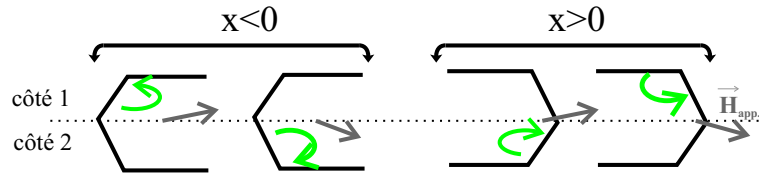


FIG. 5.16 – Résumé des différentes possibilités de nucléation en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué autour de  $[001]$ . La flèche courbée indique le lieu de la zone de nucléation et sa vorticit .

structure de type Bloch.

Exp rimentalement, la perturbation introduisant une brisure de sym trie peut correspondre   des d fauts de forme,   l'influence de marches atomiques ou des champs dipolaires d'autres  lots... Le point   conserver c'est que la nucl ation vers une structure de type Bloch et une structure de type diamant sont tr s proches et sont d termin es par la pr sence de ces possibles perturbations.

## 5.3 D pendance angulaire du renversement d'un  lot

### 5.3.1 Mesures par microsquid

Dans cette section, nous pr sentons une  tude par microsquid du mode de renversement d'un  lot individuel de Fe, et de la d pendance angulaire de son cycle d'hyst r sis. Nous utilisons des microsquids fabriqu s directement sur les  lots auto-assembl s de Fe/Mo(110), comme il a  t  d crit dans la section 4.2.2. La Figure 5.17 pr sente une image AFM du squid de taille  $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ , que nous avons s lectionn  pour r aliser les mesures expos es ci-dessous. Deux  lots sont pr sents   proximit  du micro-SQUID, mais seul la contribution de l' lot positionn  au niveau du bras du squid sera d tect e. L' lot au centre de la boucle est en effet beaucoup moins bien tr s peu coupl  que l' lot positionn  sur ou dans le bras du microsquid [Wernsdorfer96a]. A partir de cette image AFM, nous pouvons caract riser tr s exactement la morphologie de l' lot de Fe mesur . Il pr sente la forme caract ristique des  lots 3D compacts de Fe obtenus par d p t sur Mo(110)   haute temp rature, avec les facettes inclin es    $45^\circ$  et  $60^\circ$  (cf. section 2.3). On note qu'une des facettes  $C_1^+$ , de type (101), est plus d velopp e que la facette  $C_2^+$  adjacente, de type (011), ce qui conduit   une dissym trie de la forme de l' lot par rapport   la forme typique. Les dimensions de l' lot sont l g rement inf rieures aux  lots caract ris s dans les sections pr c dentes (sections 5.1 et 5.2) :  $L = 420\text{nm}$ ,  $w = 200\text{nm}$  et  $h = 30\text{nm}$ . On s'attend n anmoins   un comportement magn tique similaire.

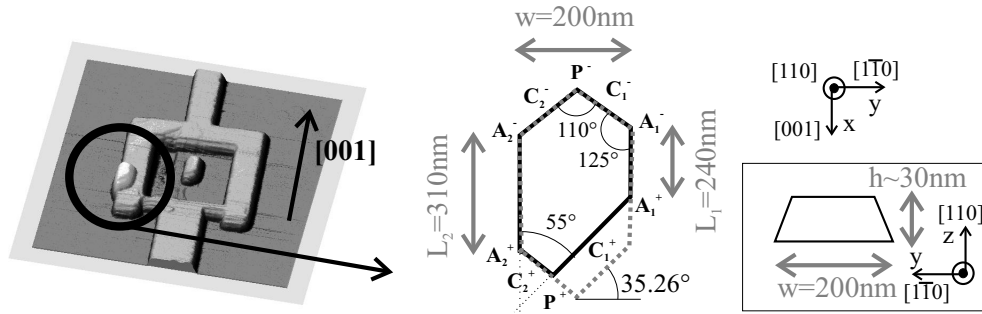
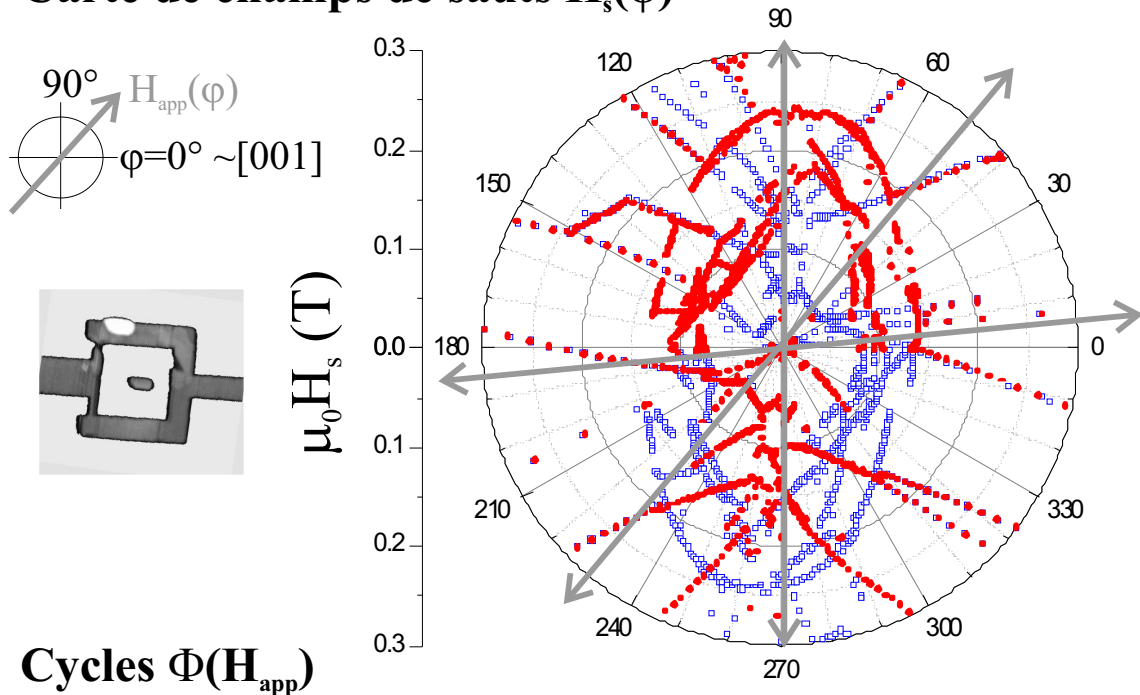


FIG. 5.17 – Image AFM ( $2\mu m \times 2\mu m$ ) du microsquad et schéma de la morphologie de l'îlot compact de Fe étudié. On rappelle également les notations qui sont utilisées pour décrire les processus de nucléation (voir aussi Figure 5.7).

Des cycles d'hystérésis ont été réalisés à  $\approx 40mK$  avec un champ appliqué dans toutes les directions du plan de l'échantillon par pas de  $1^\circ$ , et un champ de saturation de  $0.42T$ . La Figure 5.18 présente en exemple les cycles de flux (microsquad) pour trois angles du champ appliqué :  $6^\circ$ ,  $50^\circ$  et  $90^\circ$  par rapport à la direction  $[001]$ . La carte des champs pour lesquels un saut de flux est détecté, est donnée en représentation polaire sur la même figure. Il s'est avéré que l'ensemble de ces sauts de flux présentent deux origines physiques distinctes. La première catégorie de sauts, qui nous intéresse, est associée aux variations de flux rayonné par la particule de Fe. Il se superpose une deuxième catégorie de sauts, attribués à la formation de vortex supraconducteurs dans la boucle de Nb, qui se traduisent par des sauts multiples du quantum de flux  $\Phi_0$ . La détection simultanée de vortex supraconducteurs (flux piégés) n'est pas systématique dans les mesures par micro-SQUID [Wernsdorfer96a]; elle est généralement liée à l'existence d'une rugosité au niveau de la boucle supraconductrice, ou comme ici à la présence de particules magnétiques de taille importante situés directement dans la boucle supraconductrice. De manière à isoler les sauts qui caractérisent le comportement magnétique de la particule de Fe, il est nécessaire d'identifier la catégorie à laquelle appartient chaque saut de flux mesuré.

Pour ce faire, nous avons utilisé le fait que le champ critique correspondant à la formation d'un vortex supraconducteur dépend fortement de la température de mesure ( $T < 2.4K$ ), et peut être fortement perturbée par l'application d'un champ additionnel perpendiculaire au plan du micro-SQUID ( $|H_Z| < \Phi_0$ ). Par contre, pour de telles conditions de mesures, les propriétés des îlots de Fe sont inchangées et par conséquent, la dépendance avec le champ  $\overrightarrow{H_{app}}$  des champs de sauts de la particule de Fe n'est pas modifiée. La Figure 5.19 présente la carte des champs de sauts de flux détectés pour deux températures  $4.2K$  et  $\approx 40mK$ , et pour différentes valeurs de champ transverse appliqué. On constate effectivement qu'une grande partie des sauts de flux sont décalés lorsque la température est augmentée ou lorsqu'un champ

### Carte de champs de sauts $H_s(\varphi)$



### Cycles $\Phi(H_{app})$

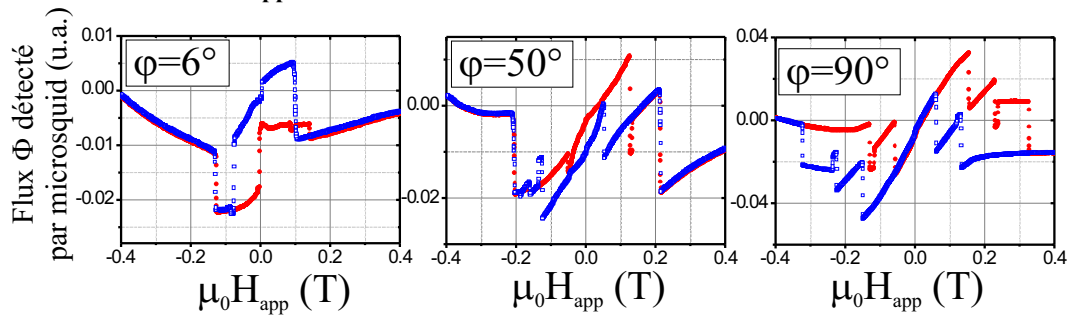


FIG. 5.18 – Cycles de flux mesurés par micro-SQUID pour trois angles du champ appliqué  $\varphi = 6^\circ, 50^\circ, 90^\circ$ . Carte des champs de saut en fonction de l'angle  $\varphi$  et de l'amplitude du champ appliqué. Les mesures ont pratiquement été réalisées entre  $\varphi = 0$  et  $\varphi = 180$ , (■) correspond aux champs croissants et (□) correspond aux champs décroissants.

transverse est appliqué (à  $T \approx 40mK$ ). L'ensemble de ces sauts peut donc être associé à la formation de vortex supraconducteurs dans la boucle de Nb. De plus, lorsqu'un doute subsistait, nous avons réalisé des cycles mineurs d'aimantation pour retrouver pour chaque saut de nucléation identifié (ou inversement d'annihilation), le saut d'annihilation (ou inversement de nucléation) qui lui est associé. A partir de l'examen attentif de l'ensemble des données expérimentales, il nous est donc possible d'extraire les champs de saut caractérisant les propriétés magnétiques de la particule de Fe qui sont présentés sur la Figure 5.20a-b.

Il est enfin possible de reconstruire approximativement les cycles d'hystérésis (cycle de flux détecté par le micro-SQUID) pour les différents angles d'application du champ extérieur. Pour ce faire, il faut décaler chaque saut associé à un vortex supraconducteur d'un multiple de  $\Phi_0$ . La Figure 5.20c présente les cycles d'hystérésis corrigés des sauts associés au piégeage de flux. Il faut noter que les cycles correspondant à des angles faibles sont moins bien définis qu'à  $90^\circ$ , car le couplage avec le micro-SQUID est plus grand lorsque le champ de fuite rayonné par l'îlot est aligné perpendiculairement au bras du micro-SQUID [Wernsdorfer96a].

Discutons d'abord de la dépendance angulaire des champs de nucléation et d'annihilation de façon qualitative. Pour les champs élevés, la particule est presque saturée. Si ce champ est réduit, le champ démagnétisant tend à favoriser la formation de domaines vers une structure avec fermeture de flux. On s'attend pour un champ suffisant  $H_{nuc}$ , à la nucléation d'un ou deux vortex comme nous l'avons décrit dans la section 5.2 pour  $\varphi = 0^\circ$ . Une fois nucléés, les vortex prennent une position pour laquelle l'énergie totale (dominée par les termes dipolaire  $E_d$  et Zeeman  $E_Z$ ) est minimisée. Si ensuite le champ est augmenté, on s'attend au déplacement des vortex jusqu'aux bords de la particule où ils pourront être expulsés pour un champ appliqué  $H_{ann}$  suffisant. Comme l'énergie dipolaire augmente avec l'angle entre  $0$  et  $90^\circ$ , on s'attend à ce que la paroi se nucléée plus facilement pour les angles proches de  $90^\circ$ . Pour la même raison, il faut appliquer un champ plus élevé pour expulser les vortex.

La Figure 5.21 compare la valeur du champ démagnétisant  $H_{dem}$  calculé par une approche numérique dans l'approximation d'une aimantation uniforme aux champs mesurés de nucléation et d'annihilation. L'évolution de  $H_{nuc}$  et  $H_{ann}$  avec le champ dipolaire décrite ci-dessus est qualitativement observée ici, puisque plus on se rapproche de  $\varphi = 90^\circ$ , correspondant au maximum de l'énergie dipolaire, plus  $H_{nuc}$  et  $H_{ann}$  sont grands. Cependant, il existe un écart important et non constant entre  $H_{nuc}$  ou  $H_{ann}$  et  $H_{dem}$ . Les simulations présentées dans la section précédente (section 5.2), correspondant uniquement au cas  $\varphi \simeq 0^\circ$ , montrent que la configuration avant la nucléation n'est pas uniforme. Ici, même si les îlots sont plus petits, leurs dimensions restent grandes devant les longueurs caractéristiques du magnétisme  $\ell_{Bloch} \simeq 60nm$  et  $\ell_{ech} \simeq 10nm$ . On attend par conséquent à la rémanence une configuration multi-domaines, ce qui est corroboré par le fait que  $H_{ann} > 0$ . Du fait de la forme non

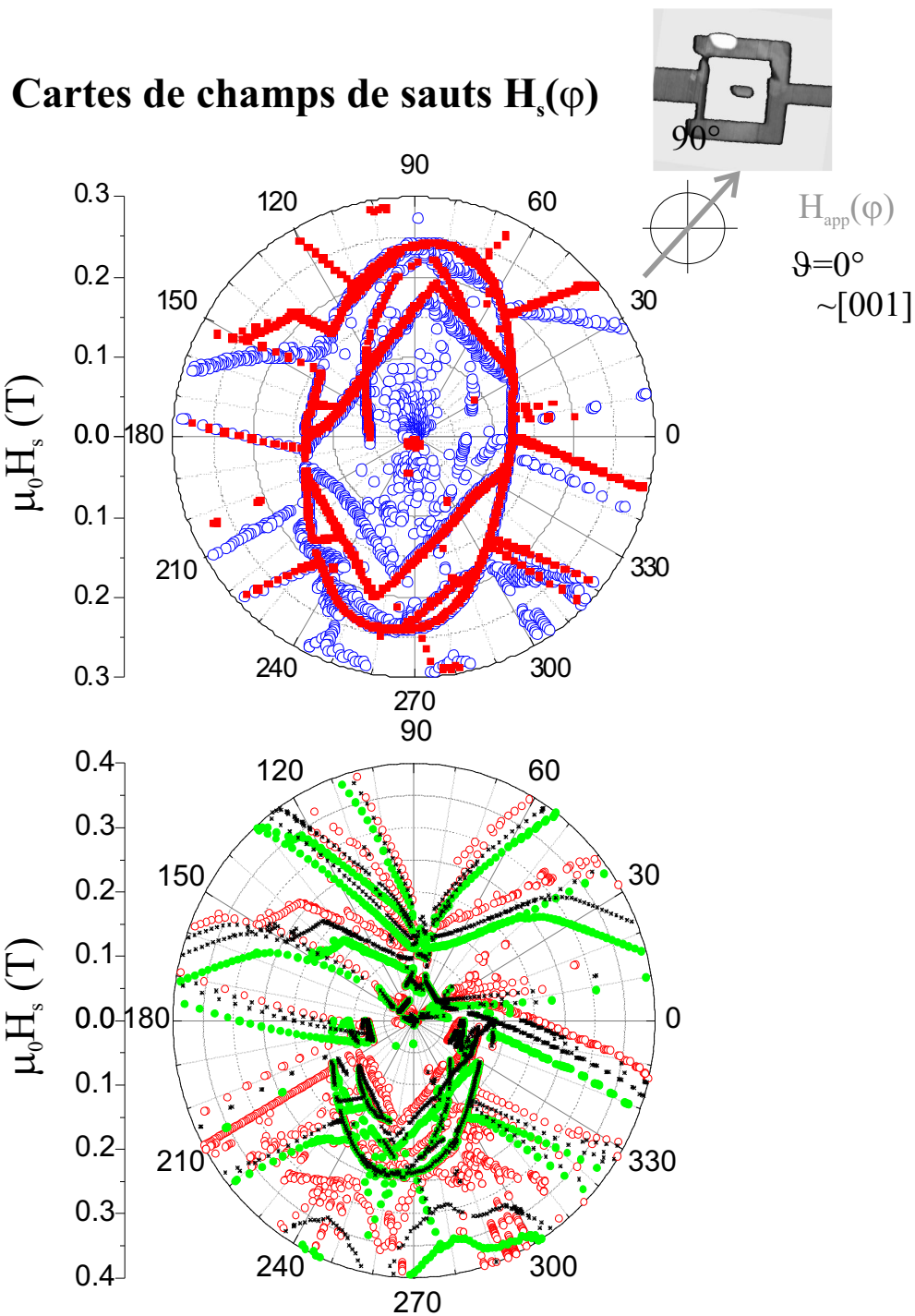


FIG. 5.19 – Mesure de la dépendance des champs de saut de flux en fonction de la direction et de l'amplitude du champ appliqué, (a) pour différentes températures  $T \approx 40mK$  (carrés pleins) et  $T \approx 2K$  (ronds ouverts) et (b) à  $T \approx 40mK$  pour différents champs transverses  $\mu_0 H_z = 0T$  (carrés noirs),  $\mu_0 H_z = -0.02T$  (ronds pleins),  $\mu_0 H_z = 0.02T$  (ronds ouverts).

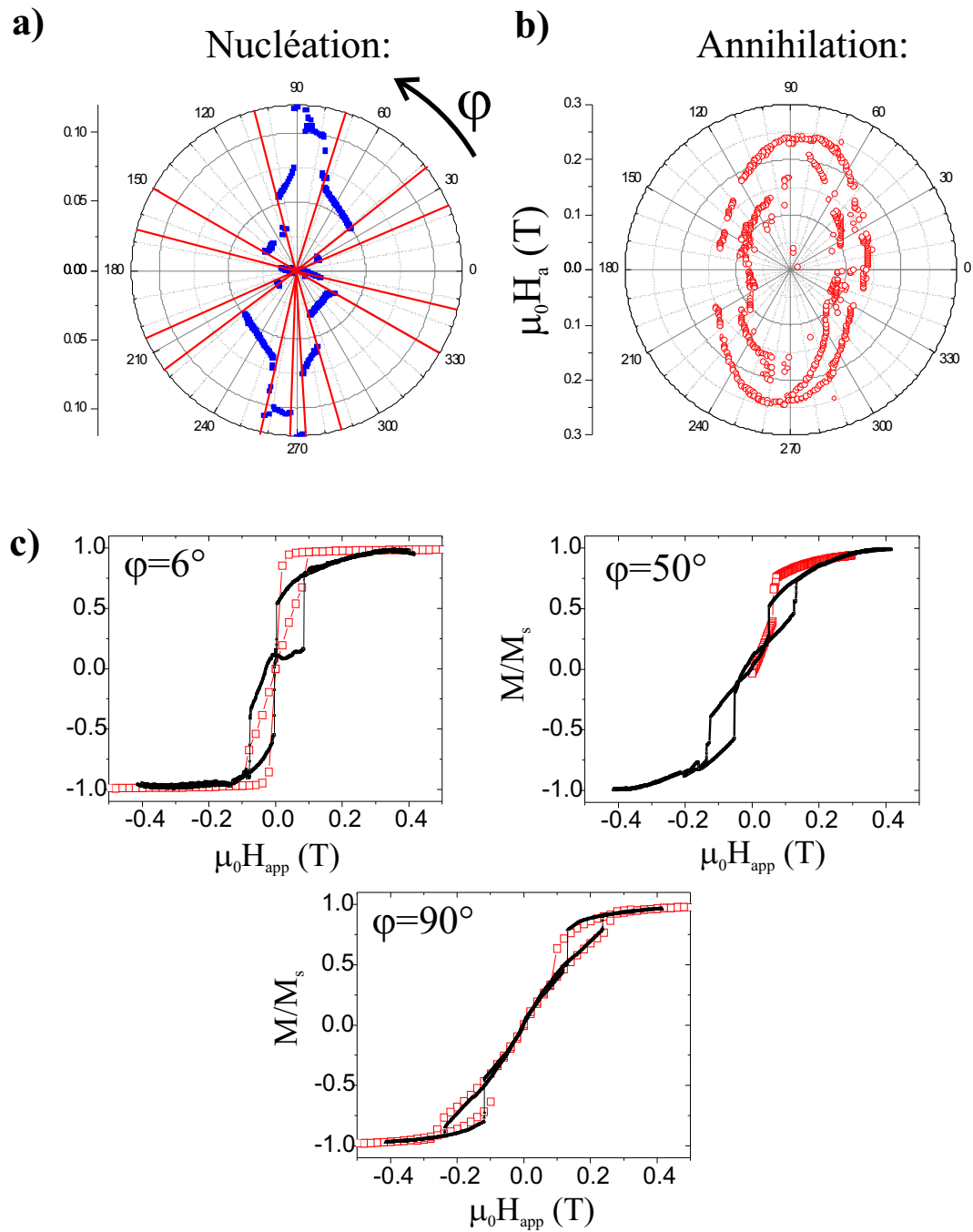


FIG. 5.20 – Dépendance angulaire des champs de nucléation (a) et d'annihilation (b) de la particule de Fe étudiée. (c) Cycles d'hystérésis reconstitués pour 3 angles  $\varphi = 6^\circ$ ,  $\varphi = 50^\circ$  et  $\varphi = 90^\circ$  (traits pleins), comparés aux résultats des simulations micromagnétiques ( $\square$ ) (section 5.3.2).

ellipsoïdale de l'îlot, on s'attend effectivement à avoir aussi une configuration non uniforme avant la nucléation. Une analyse basée sur le champ dipolaire, calculé dans l'approximation d'une aimantation uniforme, n'est alors pas adaptée et il faut faire appel à la simulation micromagnétique.

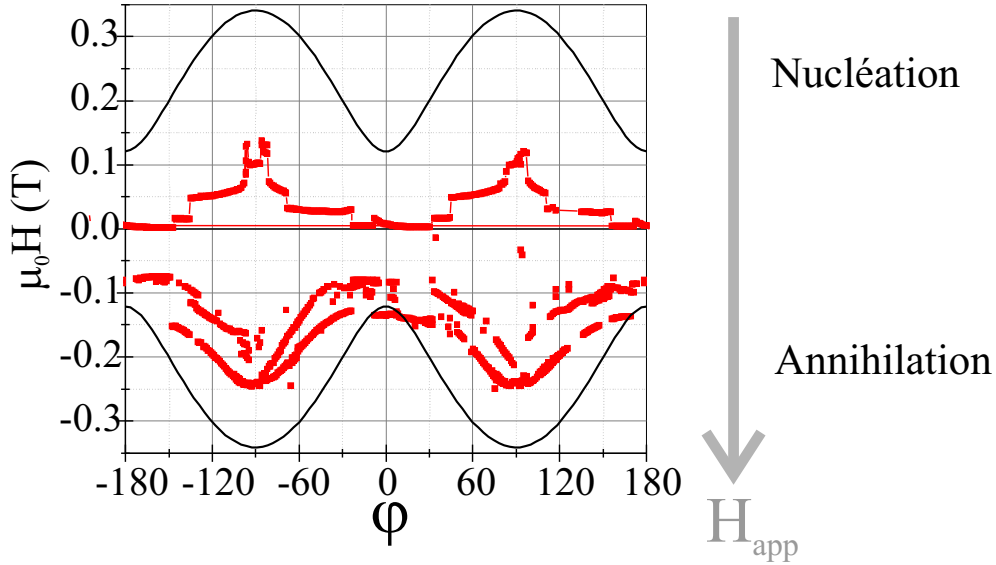


FIG. 5.21 – Dépendance angulaire des champs de nucléation (champs positifs) et d'annihilation (champs négatifs) déterminés par mesures microsquid, comparés à la dépendance angulaire du champ dipolaire, calculé pour une aimantation uniforme.

A partir de l'observation des Figures 5.20 et 5.21, on note que  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$  n'est pas symétrique par rapport à l'angle  $\varphi = 0^\circ$ . Ceci peut être relié à la forme dissymétrique de l'îlot que nous avons étudié.  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$  présente de plus des discontinuités pour plusieurs angles : à  $\varphi \simeq -86^\circ$ ,  $\varphi \simeq -81^\circ$ ,  $\varphi \simeq -69^\circ$ ,  $\varphi \simeq -24^\circ$ ,  $\varphi \simeq -8^\circ$ ,  $\varphi \simeq 32^\circ$ ,  $\varphi \simeq 45^\circ$ ,  $\varphi \simeq 83^\circ$ . Ce type de discontinuité a déjà été observé dans l'étude de la dépendance angulaire de la nucléation de particules de Co nanocristallisés [Wernsdorfer96a, Wernsdorfer96c]. Ces discontinuités avaient alors été attribuées à des défauts de surface. Ici la particule est épitaxiée et présente une structure très bien définie. On peut envisager que ces discontinuités puissent être reliées à la forme non ellipsoïdale de la particule. Les simulations micromagnétiques vont nous permettre de préciser l'origine de ces discontinuités.

### 5.3.2 Simulations : $H_{\text{nuc}}$ en fonction de $H_{\text{app}}(\varphi)$

Dans le but d'analyser quantitativement les résultats expérimentaux de la dépendance des champs de nucléation et d'annihilation en fonction de l'angle  $H_{\text{app}}$ ,

nous avons réalisé des simulations micromagnétiques. Dans la limite de cette thèse, nous nous sommes intéressés en premier lieu à la nucléation et plus particulièrement à la question de l'origine des discontinuités de  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$ .

Pour la simulation nous avons considéré une forme approchée des îlots avec des bords droits (hexaplot) en reproduisant la base de l'îlot identifiée par AFM (cf. Figure 5.17). Compte tenu du temps de calcul important pour chaque simulation de cycle d'hystérésis, à multiplier par le nombre d'angle  $\varphi$  à tester, nous nous sommes restreints à l'étude de la nucléation en partant d'un état saturé à  $H_{\text{app.}} = 0.5T$  : retour en champ de  $0.5T$  à  $0T$ . Nous avons dû aussi considérer un maillage plus grossier avec un pas de  $5\text{nm}$  dans les deux directions du plan et un pas de  $15\text{nm}$  suivant  $z$ . L'aimantation étant dans le plan de l'échantillon, on s'attend à ce que l'utilisation d'un tel pas de maillage vertical n'apporte pas de perturbation majeure, au moins pour la détermination des champs de nucléation. Nous avons vérifié pour  $\varphi = 0^\circ$  et  $\varphi = \pm 50^\circ$  que cette approximation n'apporte relativement que peu d'erreur dans la détermination du champ de nucléation. La Figure 5.22 montre les cycles d'hystérésis pour ces trois angles  $\varphi$  obtenus avec un pas de maillage vertical de  $5\text{nm}$  ou de  $15\text{nm}$ . On note tout d'abord qu'il apparaît deux champs de saut d'aimantation, correspondant à la nucléation d'un premier vortex puis d'un deuxième vortex. Comparé aux simulations sur un hexaplot symétrique, l'existence de deux sauts de nucléation peut être reliée à la modification de la forme de la pointe en ( $x > 0$ ) de l'hexaplot. Le premier saut d'aimantation correspondant à l'introduction du vortex issu de la pointe symétrique ( $x < 0$ ) ne dépend pas du pas de maillage vertical. Par contre, le deuxième saut d'aimantation, relié à l'introduction du deuxième vortex ( $x > 0$ ), est décalé vers des champs plus forts lorsqu'un pas de maillage vertical de  $15\text{nm}$  est utilisé.

Les champs de sauts de nucléation obtenus par les simulations à différents angles  $\varphi$  sont comparés sur la Figure 5.23 aux résultats des mesures de microsquid. L'accord entre les simulations micromagnétiques et les mesures par microsquid est relativement bon. La simulation rend bien compte des phénomènes mis en jeu au cours de la nucléation. En particulier, le processus de rotation réversible de l'aimantation permettant de réduire le champ dipolaire et donc de diminuer le champ de nucléation, est bien reproduit.

Comme pour les mesures expérimentales, les simulations font apparaître une discontinuité dans l'évolution angulaire du champ de nucléation  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$ , en particulier entre  $\varphi = 40^\circ$  et  $\varphi = 50^\circ$ , et entre  $\varphi = -40^\circ$  et  $\varphi = -50^\circ$ . On note également une diminution brusque de  $H_{\text{nuc}}$  autour de  $\varphi = -80^\circ$ . Par symétrie, on retrouve les mêmes discontinuités entre  $90^\circ$  et  $180^\circ$  et entre  $-90^\circ$  et  $-180^\circ$ . Les configurations magnétiques d'équilibre calculées pour  $\varphi = -40^\circ$  et  $\varphi = -50^\circ$  juste avant la nucléation sont présentées sur la Figure 5.24. A partir de ces deux exemples on constate

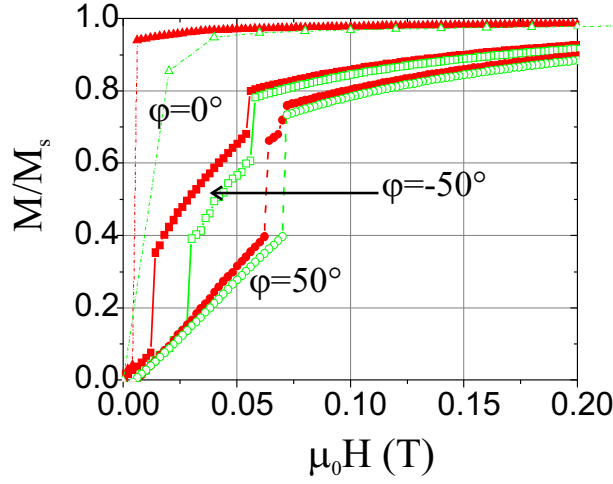


FIG. 5.22 – Comparaison des cycles d’aimantation issus des simulations avec un pas de maillage vertical de 5nm (formes pleines) et 15nm (formes ouvertes), pour trois angles du champ appliqué :  $\varphi = 0^\circ$  (triangles),  $\varphi = -50^\circ$  (carrés) et  $\varphi = 50^\circ$  (ronds).

qu’entre  $\varphi = -40^\circ$  et  $\varphi = -50^\circ$ , le coin où se concentre les lignes de flux rentrantes passe de  $P^-$  à  $A_1^-$ . La configuration issue de la rotation réversible de l’aimantation pour minimiser l’énergie dipolaire est alors qualitativement différente. Cette différence permet d’expliquer la discontinuité de champ de nucléation.

Celle-ci peut se comprendre qualitativement du fait de la différence d’angle des coins  $P^-$  ( $110^\circ$ ) et  $A_1^-$  ( $125^\circ$ ). En  $P^-$ , l’angle est plus aigu, ce qui tend à stabiliser d’avantage l’aimantation. Si on avait  $\vec{M}$  uniforme, on parlerait d’effet de forme plus important. La nucléation d’un vortex permettant d’évoluer vers une structure avec fermeture de flux est alors retardée. En conclusion, la possibilité d’obtenir des configurations micromagnétiques différentes avant l’introduction d’un vortex est intrinsèquement reliée à la forme de l’îlot et l’évolution s’effectue de manière abrupte, ce qui explique la discontinuité de  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$ .

Cette même approche qualitative permet d’envisager aussi la dissymétrie des champs de saut par rapport à  $\varphi = 0^\circ$ . En effet, si  $\varphi \in [50^\circ, 90^\circ]$ , les points où se concentrent les flux magnétiques rentrant et sortant sont  $A_1^+$  et  $A_2^-$ . Elles présentent des angles équivalents, et on s’attend de ce fait à observer des sauts de nucléation proches. C’est ce que nous donne effectivement la simulation par exemple à  $\varphi = 50^\circ$  (cf. Figure 5.22). Si par contre  $\varphi \in [-50^\circ, -90^\circ]$ , les points à considérer sont  $A_1^-$  et l’ensemble  $A_2^+$  et  $P^+$ . La nucléation en  $A_1^-$  serait, avec cette approche qualitative, similaire à la nucléation en  $A_1^+$ . Du fait de la petitesse du côté  $C_2^+$ , la configuration ne peut pas évoluer en  $A_2^+$  indépendamment de ce qui se passe  $P^+$ . On ressent un angle de  $55^\circ$  dans la région proche de  $A_2^+$  et de  $P^+$ , ce qui pourrait expliquer que la nucléation soit retardée. C’est qualitativement ce que l’on peut

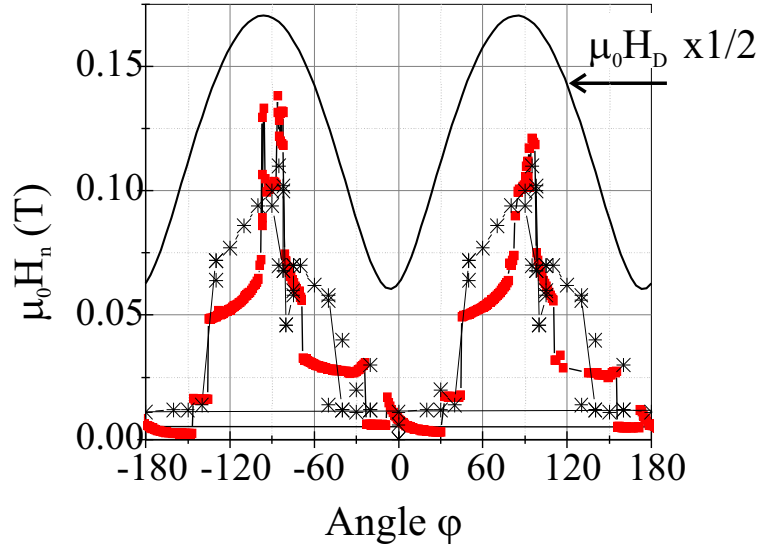


FIG. 5.23 – Comparaison des champs de saut correspondant à la nucléation déterminé à partir des simulations micromagnétiques (\*), et obtenus par mesures de micro-SQUID (■).

constater des cycles d’hystérésis tirés des simulations à  $\varphi = -50^\circ$  (cf. Figure 5.22).

Comparons plus précisément les champs de saut donnés par la simulation et mesurés par microsquid. On peut observer que la position de la discontinuité prévue par la simulation entre  $\varphi = +40^\circ$  et  $\varphi = +50^\circ$  est bien retrouvée expérimentalement. Par contre, pour  $\varphi \in [0; -90^\circ]$ , on observe des discontinuités de  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$  à  $\varphi \simeq -8^\circ$  et  $\varphi \simeq -69^\circ$  quand la simulation prévoit une discontinuité entre  $\varphi = -40^\circ$  et  $\varphi = -50^\circ$ . Dans la même gamme d’angle du champ appliqué, le microsquid ne détecte qu’un seul saut de flux associé à la nucléation, alors que la simulation prévoit deux sauts bien séparés. On note enfin que pour  $\varphi \in [0^\circ, -90^\circ]$ , on attend une forte influence de la forme pointue de l’îlot autour de  $P^+$  et  $A_2^+$ . Les différences peuvent donc être attribuées à une description trop simplifiée ou erronée de la géométrie de cette région. On peut envisager également la présence de défauts de surface.

Les structures en domaines observées à l’issue des simulations micromagnétiques pour différents angles  $\varphi$  du champ appliqué sont des structures diamant ou Bloch. On note cependant en comparant les résultats des simulations à  $\varphi = -50^\circ$ , qu’avec un maillage vertical grossier de 15nm on aboutit à une structure diamant, alors qu’avec un maillage vertical de 5nm, il se forme une structure de type Bloch. Par conséquent, même si l’erreur apportée par l’utilisation d’un maillage de 15nm n’a pas ou peu de répercussions sur le cycle d’hystérésis, il peut par contre influencer le type de vortex introduit dans l’hexaplot au moment de la nucléation, et donc la configuration obtenue à la rémanence. On voit ici la limite de cette approximation.

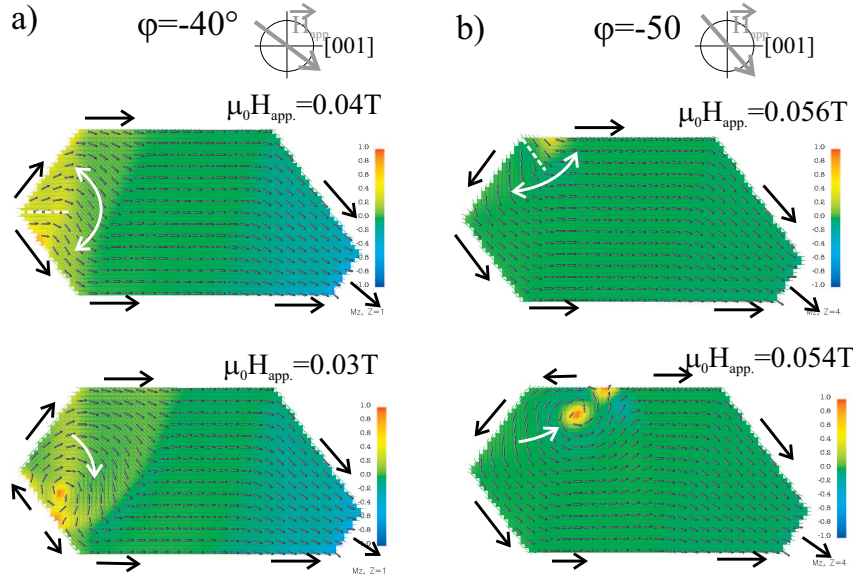


FIG. 5.24 – Configurations magnétiques dans le plan médian de l’hexaplot ( $z = h/2$ ) avant et après le premier saut de nucléation pour  $\varphi = -40^\circ$  et  $\varphi = -50^\circ$ . Ces simulations ont été réalisées avec un pas de maillage cubique de 5nm de côté.

Notons finalement que pour la simulation avec  $\varphi = 0^\circ$  et un pas de maillage de 5nm, la configuration d’équilibre obtenue à la rémanence est une structure de type Bloch. Par conséquent, la dissymétrie de forme de l’hexaplot que nous avons considérée dans cette section, agit comme le tilt2, et permet de briser la symétrie du système pour aboutir à une configuration de type Bloch, comme le montre la Figure 5.25.

## 5.4 Bilan sur le retournement d’un îlot multidomaine

Dans ce chapitre, nous avons considéré l’étude des propriétés de plots 3D de taille juste sub-micronique, pour lesquels l’anisotropie est dominée par la forme. À la rémanence, les mesures MFM montrent que les îlots présentent différentes configurations avec fermeture de flux, qui correspondent soit à une structure de type Bloch, soit à une structure de type diamant, soit à une troisième configuration non identifiée. La simulation micromagnétique, effectuée sur des îlots de forme approchée (hexaplot) et de taille  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$ , permet de retrouver ces deux types de configuration, et montre que le choix des configurations est piloté aux premiers stades du retour en champ, par une brisure de symétrie.

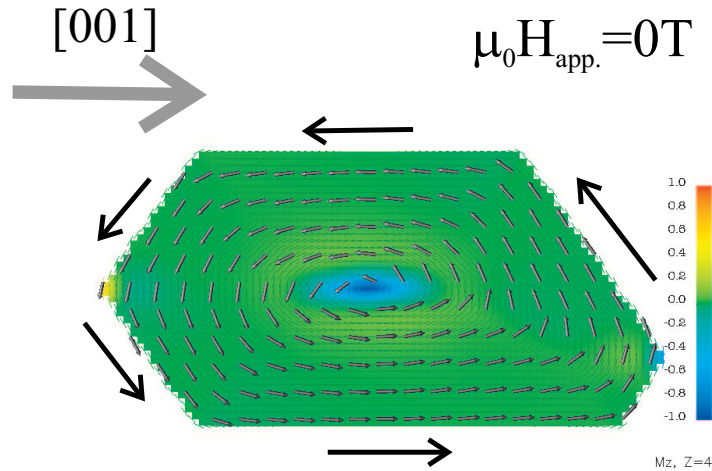


FIG. 5.25 – Configuration magnétique dans le plan médian de l'hexaplot dissymétrique ( $z = h/2$ ), obtenue à la rémanence après saturation suivant  $[001]$ . La simulation a été réalisée avec un pas de maillage cubique de 5nm de côté.

Au niveau expérimental, il existe de multiples sources possibles qui peuvent piloter cette brisure de symétrie : l'activation thermique, le désalignement du champ, des interactions dipolaires entre particules, des défauts de forme ou de la rugosité, les marches du substrat, ... La simulation confirme qu'une infime perturbation peut entraîner la modification du mode de retournement. Inversement, il faut être très prudent dans l'interprétation des configurations obtenues et du fait de la symétrie excessive des simulations, il apparaît important de briser toutes les symétries du problème pour éviter un blocage numérique du retournement. Nous avons testé au cours de la thèse différentes dissymétries : la désorientation du champ (tilt1 et tilt2), l'utilisation d'un gradient de champ ou d'une forme dissymétrique.

Sur le même type de particules, nous avons également étudié la dépendance angulaire des champs de saut de nucléation et d'annihilation, expérimentalement par micro-SQUID et couplé à des simulations micromagnétiques. On trouve un accord qualitatif reproduisant d'une part les cycles d'hystérésis, et d'autre part la bifurcation vers deux configurations micromagnétiques différentes pour un angle compris entre  $40^\circ$  et  $50^\circ$ . Cette bifurcation résulte de la forme de l'îlot et de la possibilité d'existence de configurations non uniformes avant le saut de nucléation. On montre qu'une telle discontinuité  $H_{\text{nuc}}(\phi)$  n'est pas nécessairement imputable à des défauts, mais est imposée par la géométrie de l'îlot.

# Chapitre 6

## Études d'assemblées d'îlots présentant une rémanence non nulle

Dans ce chapitre, nous nous intéressons aux propriétés magnétiques de nanostructures auto-assemblées de Fe/Mo(110) présentant une aimantation rémanente. Dans la Section 6.1, nous présentons les propriétés magnétiques observées sur des îlots compacts dont la taille moyenne est inférieure à  $500\text{nm} \times 300\text{nm} \times 50\text{nm}$ . Des premiers résultats sur les propriétés magnétiques des bandes de Fe alignées le long des marches de Mo(110) sont ensuite présentées dans la Section 6.2. L'ensemble des résultats est discuté dans la Section 6.3.

### 6.1 Îlots compacts avec une aimantation rémanente

Dans le CHAP. 5, nous avons présenté une étude des propriétés magnétiques de plots 3D compacts de Fe de dimensions moyennes supérieures à  $550\text{nm} \times 350\text{nm} \times 65\text{nm}$ . Ce type d'îlots est obtenu à la suite d'un dépôt à 700K pour des taux de couverture  $\Theta > 2\text{nm}$ . A champ nul, les îlots présentent une configuration multidomaine avec fermeture de flux, et ne révèlent donc pas d'aimantation rémanente (Section 5.5.1). En diminuant le taux de couverture sous  $\Theta < 2\text{nm}$ , nous avons montré qu'il est possible de fabriquer des îlots compacts dont les dimensions moyennes diminuent jusqu'à environ  $275\text{nm} \times 200\text{nm} \times 35\text{nm}$  (Section 2.3.2). Nous présentons dans cette section les propriétés magnétiques mesurées pour des échantillons correspondant à un taux de couverture  $\Theta < 2\text{nm}$ .

### 6.1.1 Propriétés magnétiques en fonction de la taille moyenne des îlots

La Figure 6.1a présente les cycles d'hystérésis obtenus à 300K pour un champ appliqué suivant Fe[001] et pour différentes assemblées d'îlots compacts. On met en évidence l'apparition d'un état rémanent ( $M_r > 0$ ), et d'un champ coercitif  $H_c$  non nul, lorsque les dimensions moyennes des îlots deviennent inférieures à  $550\text{nm} \times 350\text{nm} \times 65\text{nm}$ , ce qui correspond à des taux de couverture  $\Theta \leq 1.5\text{nm}$  à  $2\text{nm}$ . La Figure 6.1b présente l'évolution de l'aimantation rémanente et du champ coercitif en fonction de la longueur moyenne  $\bar{L}$  des îlots. La même évolution qualitative de  $M_r$  et  $H_c$  est observée en fonction de la largeur moyenne  $\bar{w}$ , de la hauteur moyenne  $\bar{h}$ , ou du taux de couverture de Fe  $\Theta$ , puisque les rapports d'aspect des îlots compacts restent relativement constants et que le volume moyen des îlots est proportionnel au taux de couverture (cf. Section 2.3.2).

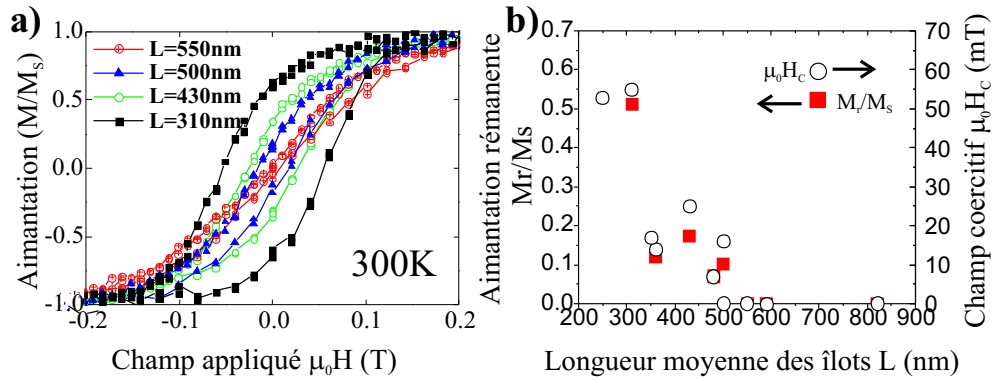


FIG. 6.1 – (a) Cycles d'hystérésis (VSM à 300K,  $H_{\text{app.}} // [001]$ ) pour des assemblées d'îlots compacts de différentes dimensions moyennes. (b) Evolution de l'aimantation rémanente (■) et du champ coercitif (○) en fonction de la longueur moyenne  $\bar{L}$  des assemblées d'îlots.

La Figure 6.2a présente les cycles d'hystérésis mesurés suivant la direction [001] et  $[1\bar{1}0]$  pour une assemblée d'îlots compacts de dimensions moyennes  $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$ . Les mesures ont été effectuées par VSM à 300K. L'axe de facile aimantation est suivant Fe[001]. Le champ d'anisotropie peut être estimé à  $\mu_0 H_a \simeq 0.3T$  à partir du cycle d'hystérésis suivant l'axe difficile  $[1\bar{1}0]$ , valeur qui équivaut au champ démagnétisant  $\mu_0 H_{\text{dem}} = \mu_0 N_d^{[1\bar{1}0]} M_s = 0.26T$  attendu pour un parallélépipède uniformément aimanté de dimensions  $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$  [Aharoni98, Hubert98]. L'anisotropie magnétique semble donc attribuable à un effet de forme comme pour les îlots 3D compacts de plus grandes dimensions (cf. Section 5.1.1). La Figure 6.2b montre l'évolution du champ coercitif en fonction de l'angle du champ appliqué, dans le plan de la couche. Le champ coercitif est maximum suivant l'axe facile Fe[001] et vaut  $\mu_0 H_c \simeq 25\text{mT}$  ce qui correspond à  $\simeq 10\%$  du champ d'anisotropie. Ceci

montre que, bien que la rémanence augmente, le processus de retournement est très loin d'être cohérent ( $\mu_0 H_c = \mu_0 H_a$ ), ce qui est compréhensible puisque l'on considère des îlots 3D de forte taille par rapport à la longueur d'échange.

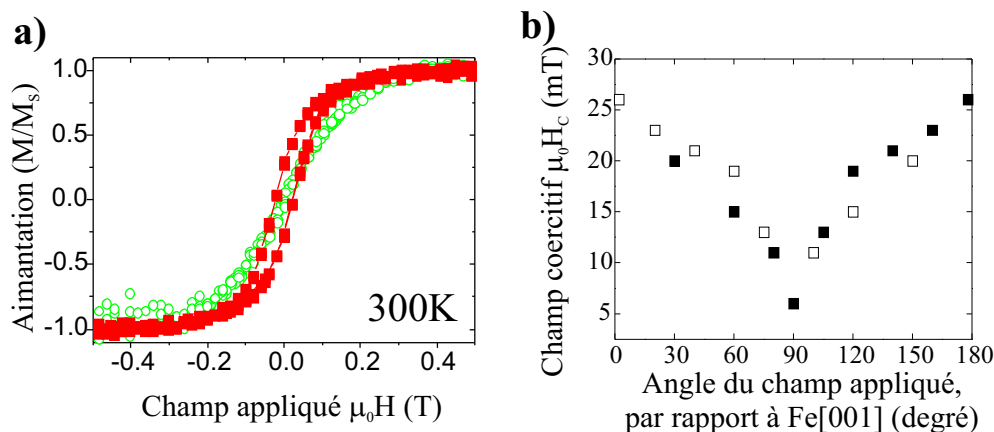


FIG. 6.2 – (a) Cycles d'hystérésis à 300K pour une assemblée d'îlots de dimensions moyennes  $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$ , avec le champ appliqué suivant  $[001]$  (■) et suivant  $[1\bar{1}0]$  (○). (b) Evolution du champ coercitif en fonction de l'angle planaire du champ appliqué par rapport à la direction  $[001]$ . Les carrés pleins correspondent aux points expérimentaux et les carrés vides sont leur symétrique par rapport à  $90^\circ$ .

La Figure 6.3a présente les cycles d'hystérésis, obtenus sur la même assemblée d'îlots compacts de dimensions moyennes  $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$ , pour différentes températures de mesure,  $T_m$ . On note que le champ coercitif de l'échantillon diminue légèrement avec la température, passant de  $\simeq 30\text{mT}$  à  $10\text{K}$  à  $\simeq 25\text{mT}$  à  $290\text{K}$  (cf. Figure 6.3b). Les Figures 6.3c et d montrent respectivement les évolutions de l'hystérésis magnétique (aire sous la courbe  $M(H)$  en champ décroissant moins  $M(H)$  en champ croissant) et l'aimantation à saturation en fonction de la température de mesure. Il apparaît d'une part que l'aimantation à saturation, normalisée à sa valeur à  $10\text{K}$ , diminue plus rapidement avec  $T_m$  que pour un échantillon de fer massif pour lequel  $M_s^{300\text{K}}/M_s^{10\text{K}} \simeq 0.99$ . D'autre part, l'hystérésis magnétique diminue avec la température en restant proportionnelle à l'aimantation à saturation (cf. encart Figure 6.3d). Cette forte dépendance de l'aimantation à saturation avec la température n'est observable que pour les échantillons ayant un taux de couverture  $\Theta < 2\text{nm}$ . Les volumes associés à la couche de mouillage et aux îlots biseautés sont alors comparables à celui des îlots compacts. Pour l'échantillon considéré, la quantité de fer déposée ( $\Theta \simeq 1.2\text{nm}$ ) est répartie à 15% dans le plan atomique de mouillage, à 40% dans les îlots de  $1\text{nm}$  de haut (îlots biseautés ou couche quasi-continue de  $1\text{nm}$  de haut) et à 45% dans les îlots compacts. La dépendance de l'aimantation à saturation et de l'hystérésis magnétique pourrait être liée à la couche de mouillage

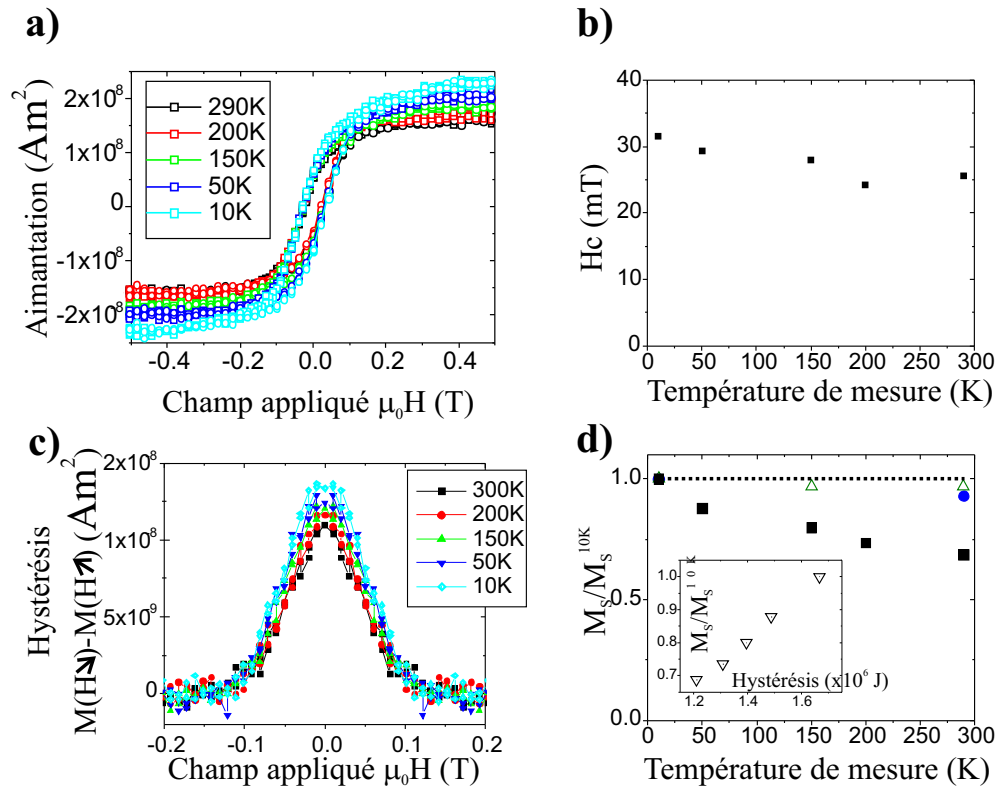


FIG. 6.3 – (a) Cycles d'hystérésis suivant l'axe de facile aimantation, Fe[001], d'îlots de dimensions moyennes  $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$  ( $\Theta \simeq 1.2\text{nm}$ ) pour différentes températures comprises entre 10K et 300K. (b) Evolution du champ coercitif avec la température (c) Hystérésis ( $M(H\downarrow) - M(H\uparrow)$ ) associé aux cycles présentés Fig.a. (d) Evolution de l'aimantation à saturation en fonction de la température de mesure pour ce même échantillon (■), et pour deux autres échantillons correspondant à des taux de couverture de  $\Theta \simeq 2.4\text{nm}$  ( $\triangle$ ) et  $\Theta \simeq 4.8\text{nm}$  ( $\bullet$ ). La ligne pointillée correspond à l'évolution de  $M_s$  du fer massif. En insert,  $M_s$  en fonction de l'hystérésis magnétique (intégrale des courbes de la Figure c).

ou aux structures (îlots biseautés ou couche quasi-continue) de 1nm d'épaisseur. Ce point sera discuté dans la Section 6.3, au regard de l'ensemble des résultats.

### 6.1.2 Analyse des propriétés magnétiques d'assemblée de particules : modèle de séparation des contributions réversibles et irréversibles

La mesure du cycle d'hystérésis d'une particule individuelle de taille sub-micronique n'est pas simple à mettre en oeuvre et nécessite l'utilisation de techniques locales telles que le micro-SQUID [Wernsdorfer01]. Dans certains cas, les cycles d'hystérésis moyen d'une particule individuelle peuvent être déduits de manière plus simple à partir de mesures réalisées sur une assemblée de particules. Idéalement, si l'ensemble des particules sont similaires et ne sont pas couplées entre elles, le cycle d'hystérésis mesuré est représentatif, à l'amplitude près, du cycle d'une particule individuelle. Pratiquement, les particules ne sont pas toutes identiques et peuvent avoir des cycles d'hystérésis quantitativement différents. Le cycle d'hystérésis macroscopique n'est alors plus représentatif du cycle d'une particule individuelle mais correspond à la somme des contributions de toutes les particules et pourra s'écarter du cycle moyen d'une particule du fait d'une distribution de champ de saut  $\rho_{\text{irrev}}$  ou d'interactions dipolaires entre les particules.

Différents modèles ont été proposés pour analyser à partir de mesures macroscopiques les propriétés magnétiques d'assemblées de particules. Les plus couramment utilisés sont les modèles de Preisach [Biorci58, Mayergoys91] ou les représentations de Henkel [Henkel64, Thamm98]. Ces modèles ont été développés pour l'étude de systèmes de grains fins (monodomains) en forte interaction. Ils ne sont donc pas adaptés à notre système où les interactions dipolaires entre îlots sont a priori négligeables du fait de la faible densité des îlots. Pour préciser le comportement moyen d'une particule individuelle à partir de mesures macroscopiques, nous avons appliqué une méthode fondée sur la détermination des contributions réversible et irréversible à la variation de l'aimantation [Fruchart98a, Fruchart98c].

Le cycle d'hystérésis d'une particule individuelle peut être caractérisé par les variations réversible et irréversible de l'aimantation telles que  $\left(\frac{dM}{dH}\right)^{\text{part}} = \left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{part}} + \chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$  avec  $\chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$  et  $\left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{part}} = \Delta M \delta(H - H_r)$  correspondant respectivement à une contribution réversible et à une contribution irréversible correspondant à un saut d'aimantation d'amplitude  $\Delta M$ . La Figure 6.4 présente  $\left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{part}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$  pour quelques cas modèles.

Les événements *irréversibles* proviennent du retournement de l'aimantation dans les particules pour  $H_{\text{app.}} = -H_r$  (cf. Figure 6.4a) ou de la nucléation et de l'annihilation de domaines pour des champs  $H_{\text{nuc}}$  et  $H_{\text{ann}}$  respectivement (cf. Figure 6.4d). La

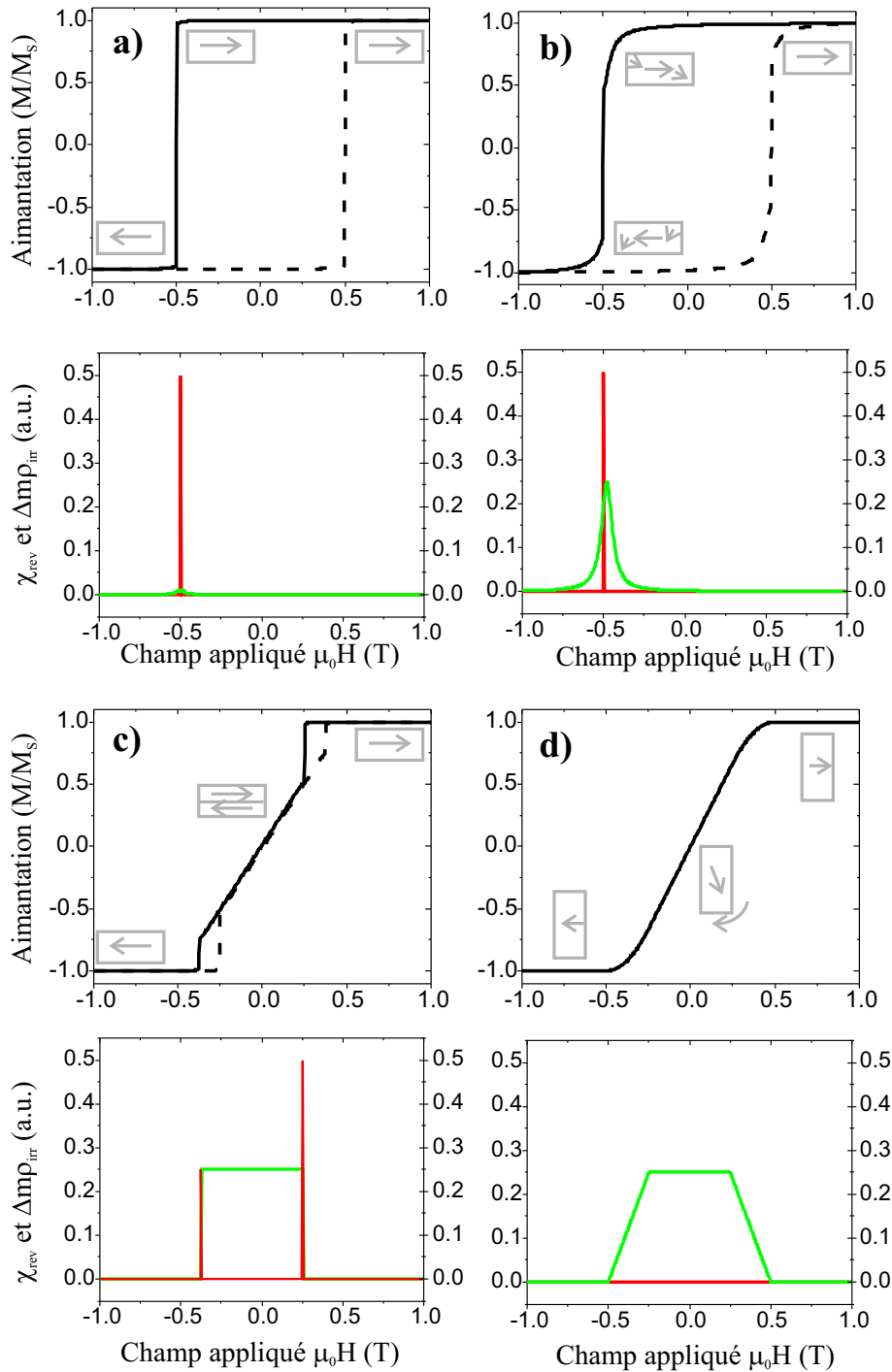


FIG. 6.4 – Représentations de cycles d'hystérésis typiques et de leurs contributions réversible (ligne claire) et irréversible (ligne foncée), déterminées pour le demi cycle en champ décroissant. (a) cycle correspondant à un retournement uniquement irréversible : saut d'aimantation d'amplitude  $\Delta M = 2$  pour  $H_{app.} = H_r < 0$ . (b) cycle d'une particule pour laquelle une variation réversible de l'aimantation se produit avant et après le saut irréversible d'aimantation. (c) cycle d'une particule multi-domaines : la nucléation intervient pour  $H_{nuc} > 0$ , elle est suivie par une étape réversible correspondant au déplacement de la paroi jusqu'à l'annihilation pour  $H_{ann} < 0$ . (d) cycle associé à un mode de retournement uniquement réversible : rotation continue de l'aimantation suivant un axe difficile par exemple.

partie *réversible* de la variation d'aimantation peut provenir d'une part de la rotation continue des moments magnétiques correspondant à l'apparition d'un état non uniforme (cf. Figure 6.4b). La contribution réversible peut d'autre part être reliée au déplacement de vortex ou parois de domaines (cf. Figure 6.4c). La Figure 6.4d présente enfin l'exemple d'un cycle complètement réversible qui peut être rencontré pour des particules multidomaines de très grande taille (hystérésis négligeable), ou bien lorsque le champ est appliqué suivant un axe difficile. Il faut noter qu'une évolution réversible de l'aimantation sera également observée pour des particules paramagnétiques ou superparamagnétiques.

Pour une assemblée de particules, la variation d'aimantation peut également être séparée en contributions réversible et irréversible, avec  $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}} = (\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}} + \chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$ . Dans l'hypothèse de particules non couplées, la variation d'aimantation totale est donnée par la somme des contributions de toutes les particules avec  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}} = \sum_{\text{part}} (\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{part}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}} = \sum_{\text{part}} \chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$ . La contribution irréversible pour une assemblée de particules donne accès directement à la distribution de champ de retournement avec  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}} = \rho_{\text{irrev}} \Delta M$ ,  $\Delta M$  représentant la hauteur des sauts irréversibles avec l'hypothèse que  $\Delta M$  est identique pour toutes les particules. Dans l'hypothèse d'une variation réversible liée au noyau de nucléation qui déclencheront le renversement irréversible, la contribution réversible d'une assemblée de particules n'est pas exprimable directement en fonction de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$ ; elle correspond en fait à une convolution de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$  avec  $\rho_{\text{irrev}}$ . La Figure 6.5 présente deux exemples de cycles d'hystérésis construits en considérant pour la Figure 6.5a une assemblée d'îlots présentant un cycle carré avec une distribution de retournement  $\rho_{\text{irrev}}$ , et pour la Figure 6.5b une assemblée d'îlots avec la même distribution de champ de retournement et un cycle moyen avec une composante réversible. Alors que les cycles de ces deux assemblées d'îlots ont une allure similaire, on peut voir dans cet exemple que la donnée des contributions réversible et irréversible permet de distinguer les deux types de retournement.

Expérimentalement,  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  peut être obtenu par une mesure de susceptibilité réversible, soit en utilisant un susceptomètre, soit en mesurant la pente à l'origine de cycles mineurs avec un magnétomètre classique. La contribution irréversible est déterminée par la différence  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}} = (\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}} - \chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  avec  $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$  calculé par dérivation du cycle majeur. A partir des caractéristiques de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  et  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$ , on peut établir des hypothèses quant au mode de retournement d'une particule de l'échantillon : choix d'un mode de retournement pour une particule moyenne ( $\chi_{\text{rev}}^{\text{part}}$ ,  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{part}}$ ) et distribution de champ de retournement  $\rho_{\text{irrev}}$ . Ces hypothèses pourront ensuite être validées en comparant des cycles mineurs expérimentaux et les mêmes cycles simulés à partir des hypothèses.

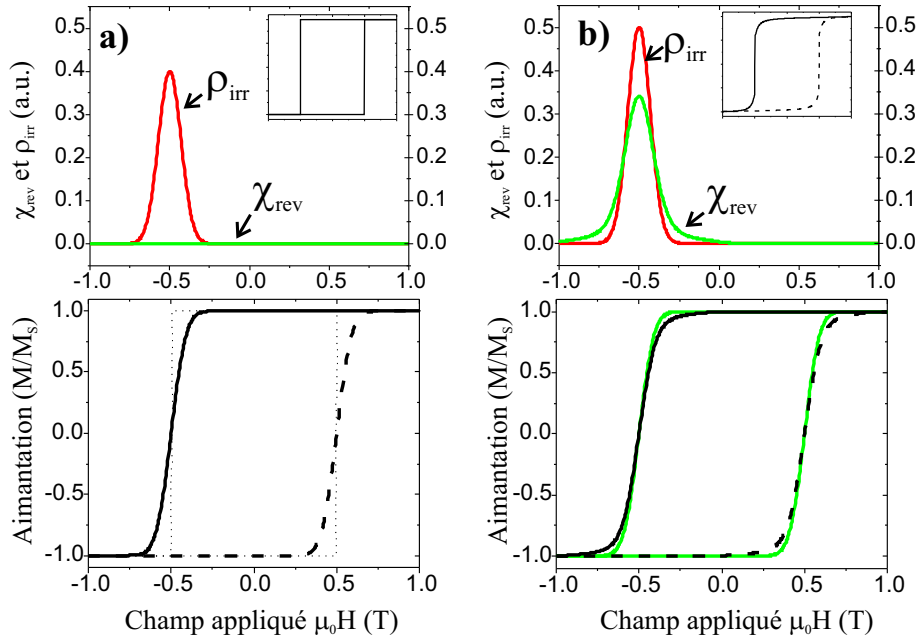


FIG. 6.5 – (a) Construction du cycle d’hystérésis d’une assemblée de particules de cycle moyen carré (cf. encart) présentant une distribution de champ de sauts irréversibles  $\rho_{\text{irrev}}$ . (b) Construction du cycle d’hystérésis d’une assemblée de particules présentant un cycle moyen avec une contribution réversible dépendante de  $H_c$  (cf. encart) avec une distribution de champ de retournement  $\rho_{\text{irrev}}$ .

### 6.1.3 Application du modèle à une assemblée d’îlots de dimensions moyennes $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$

Nous allons appliquer dans cette partie le modèle présenté ci-dessus à un dépôt à  $700\text{K}$  de  $\approx 1\text{nm}$  de Fe. L’échantillon présente une assemblée d’îlots de Fe compacts de dimensions moyennes  $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$  qui reposent sur un plan atomique de mouillage ( $\approx 20\%$  du volume de Fe) et des îlots biseautés de  $1\text{nm}$  d’épaisseur ( $\approx 40\%$  du volume de Fe). Les mesures ont été réalisées à  $10\text{K}$  et à  $300\text{K}$ , mais ne présentent pas d’autre différence qu’une diminution de l’amplitude de l’aimantation équivalente à celle décrite dans la partie 6.1.1. Nous nous limiterons donc à la description des résultats à  $10\text{K}$ , en considérant un champ appliqué décroissant :  $H_c < 0$ . La Figure 6.6 présente le cycle d’hystérésis obtenus par VSM sur l’assemblée d’îlots. La variation d’aimantation totale  $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$  a été calculée par dérivation du cycle majeur. La contribution réversible a été déterminée par deux méthodes : des premières mesures ont été réalisées en mesurant sur des cycles mineurs la pente à l’origine du rebroussement du champ (cf. Figure 6.6c), sur une plage de champ comprise entre  $20\text{mT}$  et  $40\text{mT}$ . Des mesures plus précises ont pu être effectuées sur

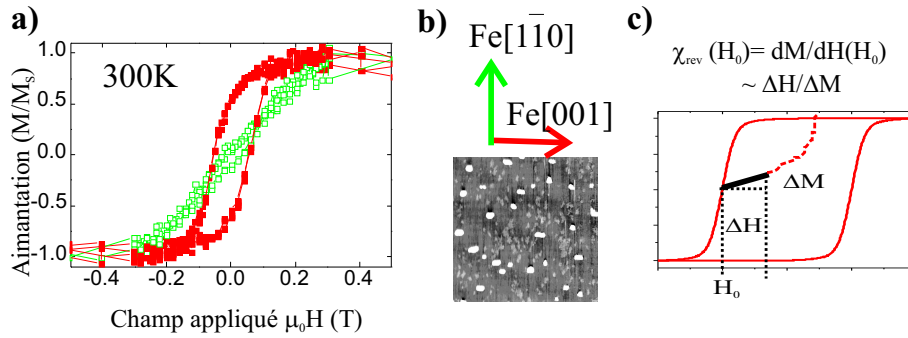


FIG. 6.6 – (a) Cycle d’hystérésis d’une assemblée d’îlots de dimensions moyennes  $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$  avec un champ appliqué suivant  $[001]$  (■) et  $[1\bar{1}0]$  (○). (b) schéma de détermination de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  avec origine de cycles mineurs. (b) Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) de l’échantillon. (c) Schéma de principe utilisé pour déterminer  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H_0)$  à partir des mesures VSM.

un susceptomètre par M. Ghidini à l’université de Parme (Italie). La fréquence de mesure utilisée est  $5\text{kHz}$  et la largeur de champ de mesure de la susceptibilité est  $1\text{mT}$ . La Figure 6.7a montre que l’on trouve un bon accord entre les deux modes de mesure. Nous avons utilisé pour l’analyse des données les résultats obtenus par mesure de susceptibilité réversible. La Figure 6.7b présente les différentes contributions à la variation d’aimantation ainsi déduites.

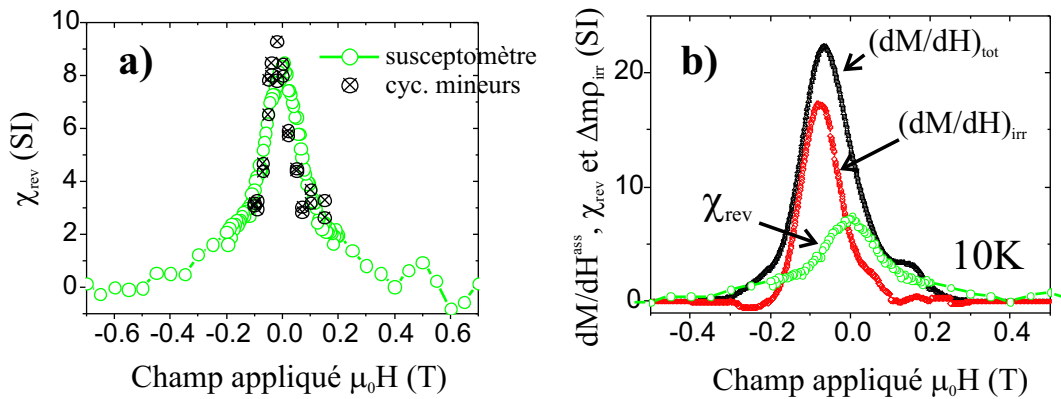


FIG. 6.7 – (a)  $\chi_{\text{rev}}$  déterminé à  $10\text{K}$  par mesure de susceptibilité réversible avec un susceptomètre et déduites de mesures de cycles mineurs pour l’échantillon de la Figure 6.6. Le champ est appliqué suivant l’axe facile :  $\text{Fe}[001]$ . (b) Contributions réversible et irréversible à la variation d’aimantation et variation d’aimantation totale de cette assemblée d’îlots.

Analysons les données expérimentales de  $\left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{ass}}(H)$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H)$ . La contribution irréversible est piquée sur  $\mu_0H \simeq -70\text{mT}$ , alors que la contribution réversible

est centrée sur  $\mu_0 H = 0$  et environ symétrique. On peut dès lors supposer que les contributions réversibles et irréversibles sont indépendantes. En effet, si la contribution réversible correspondait à la rotation des moments avant le saut d'aimantation comme dans l'exemple de la Figure 6.4b, elle devrait être piquée proche de  $\mu_0 H_c$ . La description du comportement magnétique de cette assemblée d'îlots va reposer sur les hypothèses suivantes :

- la contribution réversible  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  et la contribution irréversible  $\left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$  correspondent à deux catégories d'objets avec des modes de retournement distincts
- la première catégorie correspond à un ensemble de particule indépendantes avec un cycle d'hystérésis individuel carré et une distribution de champ de retournement décrite par  $\left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$ .
- la deuxième catégorie présente un mode de retournement essentiellement réversible décrit par  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$ .
- les interactions entre particules sont négligeables

Pour valider ces hypothèses, nous avons comparé des cycles mineurs mesurés expérimentalement à des cycles simulés. Compte tenu de l'hypothèse que les contributions réversibles et irréversibles sont essentiellement découplées, un cycle mineur de champ de rebroussement  $H_0$  (qui correspond à la séquence : saturation en champ positif, diminution du champ jusqu'à  $H_0$  puis augmentation du champ jusqu'à saturation) pourra être décrit par la relation :

$$\forall H > H_0, M_{\text{min}}(H) = M_{\text{maj}}(H_0) + \int_{H_0}^H \chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(h) dh + \int_{H_0}^H \left(\frac{dM}{dH}\right)_{\text{irrev}}^{\text{ass}} (-h) \mathbf{H}_e(-h + H_0) dh \quad (6.1)$$

avec  $\mathbf{H}_e$  la fonction de Heaviside, telle que  $\mathbf{H}_e(x) = 0$  pour  $x < 0$  et 1 pour  $x > 0$ .

La Figure 6.8 montre que l'on trouve un bon accord entre les cycles mineurs expérimentaux et les cycles mineurs calculés. Les hypothèses avancées pour décrire le renversement des nanostructures sont donc bien adaptées. Nous vérifions que les interactions entre les particules sont bien négligeables. Deux types de contributions indépendantes sont mises en évidence. La première correspond au renversement avec un cycle carré et une distribution de champ de retournement centrée sur  $-70\text{mT}$ . Cette contribution est attribuée aux îlots compacts. Le second type de comportement est essentiellement réversible. Cette contribution magnétique pourrait provenir de la couche de mouillage ou des îlots biseautés de  $1\text{nm}$  de haut. Cette hypothèse est discutée dans la Section 6.3.

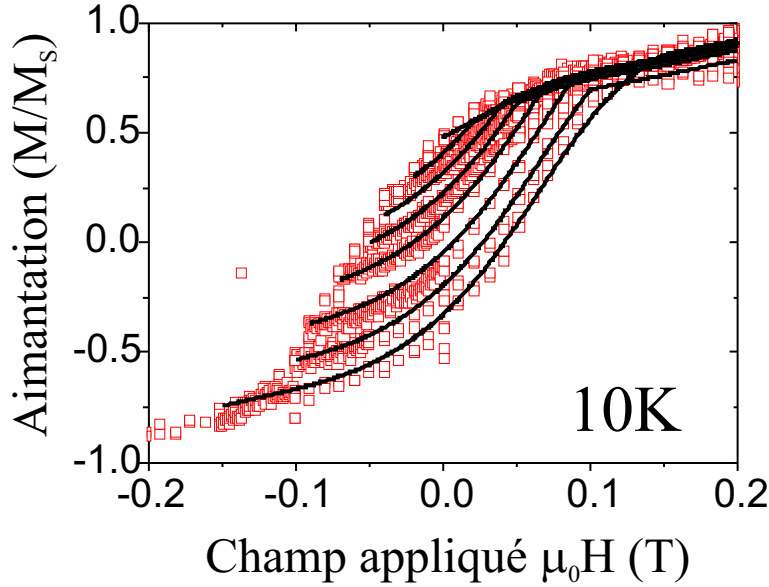


FIG. 6.8 – Comparaison entre les cycles mineurs mesurés à 10K par VSM ( $\square$ ) et les cycles mineurs simulés à partir de la séparation des contributions réversible et irréversible (traits pleins).

## 6.2 Magnétisme des structures en bandes de Fe/Mo(110)

### 6.2.1 Îlots allongés de $\simeq 5\text{nm}$ de haut

Dans cette partie, nous présentons les propriétés magnétiques de l'assemblée d'îlots plats allongés de Fe obtenue après un dépôt de  $\Theta = 1.5\text{nm}$  de Fe à  $T_s = 500\text{K}$ , suivi d'un recuit prolongé à  $T_{\text{rec}} = 700\text{K}$ . Le mode de croissance a été décrit dans la Section 3.3. La Figure 6.9b rappelle la morphologie de l'échantillon : les îlots se forment principalement le long des marches de Mo(110) et présentent une hauteur de  $\simeq 5\text{nm}$ . Pour l'échantillon étudié, la direction d'allongement des îlots coïncide avec la direction cristallographique Fe[001].

La Figure 6.9a présente les cycles d'hystérésis obtenus par VSM à température ambiante en appliquant le champ dans le plan, parallèlement et perpendiculairement à la grande longueur des îlots, c'est à dire respectivement suivant [001] et  $[1\bar{1}0]$ . On trouve que l'axe le plus difficile est suivant  $[1\bar{1}0]$  avec un champ d'anisotropie  $\mu_0 H_a \approx 150\text{mT}$ . L'axe de facile aimantation correspond à la direction [001], et présente une forte aimantation rémanente :  $M_r/M_s = 0.8$ , avec un champ coercitif de  $H_c \simeq -50\text{mT}$ . Pour la géométrie et l'orientation des îlots considérés, les anisotropies de forme, magnétocristalline et d'interface (cf. [Fruchart99b]) favorisent une aimantation alignée parallèlement à [001]. Du fait de la structuration de l'échantillon et du découplage des îlots vis à vis de l'échange,  $H_c/H_a \simeq 0.35$  est considé-

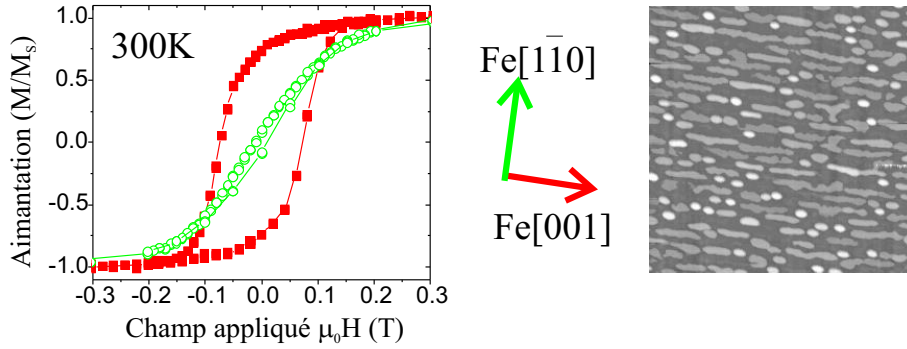


FIG. 6.9 – (a) Cycles d’hystérésis mesurés à 300K par VSM en appliquant le champ successivement suivant les directions Fe[001](■) et Fe[110] (○). (b) Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) rappelant la morphologie de l’échantillon.

ablement plus élevé que pour un film continu d’épaisseur équivalente pour lequel  $H_c/H_a \simeq 0.06$  [Fruchart98a, Fruchart99b]. De plus, pour les îlots compacts de dimensions  $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$  nous avons déterminé  $H_c/H_a \simeq 0.1$  (cf. Section 1.1.1). La différence de  $H_c/H_a$  s’explique alors par des dimensions plus faibles et à un rapport d’aspect plus plat, qui diminuent l’intensité des champs démagnétisants.

Nous avons étudié plus en détail le mode de renversement dans ces îlots suivant l’axe facile en appliquant la méthode de séparation des contributions réversible et irréversible décrite dans la Section précédente. La contribution réversible a été déterminée pour une dizaine de champs à partir de la pente à l’origine de cycles mineurs. La susceptibilité réversible  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  en fonction du champ entre -0.2T et 0.2T qui est utilisée dans la suite de l’analyse correspond à un ajustement des points expérimentaux par une fonction de type  $1/(\alpha + \beta(H - H_0) + \gamma(H - H_0)^2)$ . La contribution irréversible à la variation d’aimantation a été déterminée par différence entre la dérivée du cycle majeur  $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$  et  $\chi_{\text{rev}}$ . La Figure 6.10a présente les courbes ainsi obtenues en considérant un champ appliqué décroissant.

On note que la contribution irréversible à la variation d’aimantation totale est piquée en  $\mu_0 H = -75\text{mT}$ . La contribution réversible par contre est centrée sur  $\mu_0 H_{\text{app.}} = 0$ , ce qui nous conduit à supposer que les contributions réversible et irréversible sont indépendantes. La contribution irréversible est alors associée à la distribution de champ de saut de nanostructures présentant un cycle d’hystérésis quasiment carré. Sous l’hypothèse que les particules ne sont pas couplées et se retournent de manière indépendante, la forme des cycles mineurs peut alors être prédite à partir de la relation 6.1, en utilisant  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  déterminés expérimentalement.

La Figure 6.10b montre un très bon accord entre les cycles mineurs expérimentaux

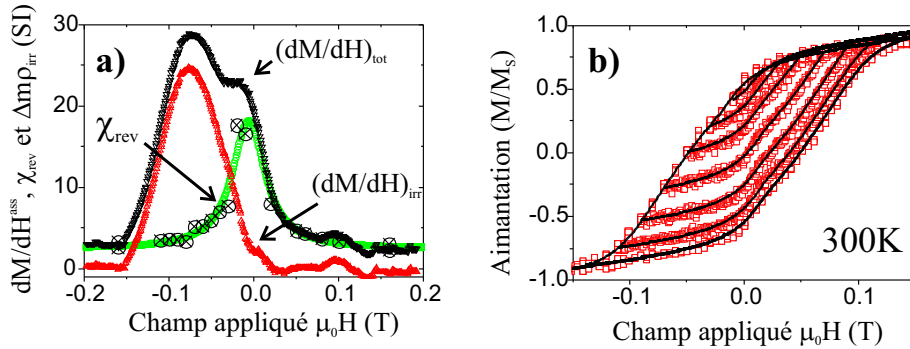


FIG. 6.10 – (a) Contributions réversible ( $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$ ) et irréversible ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{irr}}^{\text{ass}}$ ) à la variation d’aimantation en champ décroissant et variation d’aimantation totale ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$ ) de l’assemblée d’îlots plats allongés de la Figure 6.9b.  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H)$  est une interpolation à partir des points expérimentaux mesurés à l’origine de cycles mineurs ( $\otimes$ ). (b) Cycles mineurs mesurés à 300K suivant l’axe facile Fe[001] ( $\square$ ), et cycles simulés à partir de  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irr}}^{\text{ass}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  de la Fig.a.

taux et simulés, ce qui implique que l’ensemble des hypothèses avancées décrivent correctement le comportement magnétique du système. Nous mettons donc en évidence deux contributions magnétiques indépendantes. La première contribution correspond à un renversement avec un cycle d’hystérésis carré et un champ de retournement moyen de 75mT. Cette contribution est attribuée aux îlots allongés de 5nm de haut. La seconde contribution est essentiellement réversible, et représente 40% du volume magnétique. Son origine n’est pas évidente. Elle pourrait provenir de la fraction d’îlots avec une forme compacte non allongée. Par ailleurs, on rappelle que les îlots allongés reposent sur deux plans atomiques de mouillage (cf. Section 3.3) correspondant à un volume de Fe de  $\Theta \simeq 0.4\text{nm}$  soit  $\approx 25\%$  du volume déposé. La contribution réversible pourrait aussi provenir de cette couche de mouillage. Il faut noter que  $\chi_{\text{rev}}(H)$  n’est pas complètement symétrique par rapport à 0 et de ce fait, les cycles mineurs sont plus correctement reproduits en utilisant  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(-h)$  au lieu de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(h)$  dans l’équation 6.1. Cette dissymétrie de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H)$  pourrait être la signature d’un faible couplage d’échange de la couche de mouillage réversible avec les îlots allongés de Fe.

## 6.2.2 Bandes auto-organisées de Fe de 1nm de haut

Dans cette partie nous présentons des mesures préliminaires des propriétés magnétiques des bandes de Fe de 1nm auto-organisées le long des marches de Mo(110). Leur croissance est décrite dans la Section 3.2. L’échantillon étudié ne correspond pas aux caractéristiques optimales des bandes de Fe car un rapide re-dépôt à haute température a été réalisé après les étapes de croissance à température modérée et re-

cuit, entraînant la formation d'une petite proportion de structures d'environ 5nm de haut. La morphologie de l'échantillon est présentée sur la Figure 6.11b. Les bandes de Fe reposent sur deux plans atomiques de mouillage. Elles ont une largeur de  $\simeq 70\text{nm}$ , sont espacées de  $\simeq 150\text{nm}$ , et sont approximativement parallèles à la direction cristallographique Fe[001]. La quantité de Fe déposée est  $\Theta \simeq 0.9\text{nm}$  et se répartie pour  $\approx 45\%$  dans les couches de mouillage, pour  $\approx 15\%$  dans les structures parasites de hauteur 5nm, et pour  $\approx 40\%$  dans les bandes de Fe.

Les mesures magnétiques présentées ci-dessous ont été réalisées sur un SQUID Quantum Design à l'IPCMS à Strasbourg dans le cadre d'une collaboration avec F. Scheurer. La Figure 6.11a présente les cycles d'hystérésis réalisés à 300K avec un champ appliqué dans le plan le long des bandes de Fe suivant [001] et perpendiculairement aux bandes de Fe suivant  $[1\bar{1}0]$ . L'axe de facile aimantation correspond à la direction cristallographique [001], donc également à la direction des bandes de Fe. Suivant cette direction on observe un champ coercitif de  $\mu_0 H_c \simeq 50 \pm 5\text{mT}$ .

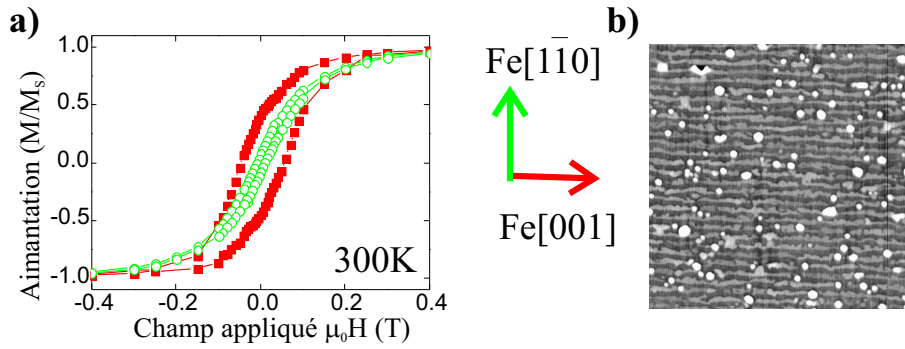


FIG. 6.11 – (a) Cycles d'hystérésis mesurés à 300K par VSM en appliquant le champ successivement suivant les directions Fe[001](■) et Fe[110] (○). (b) Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) rappelant la morphologie de l'échantillon.

Nous avons également étudié le mode de renversement des bandes de Fe en appliquant la méthode de séparation des contributions réversible et irréversible. La Figure 6.12a présente les différentes contributions à la variation d'aimantation pour un champ appliqué décroissant. La susceptibilité réversible a été mesurée pour quelques champs en mesurant la pente à l'origine de cycles mineurs. Pour la suite de l'étude nous avons estimé continûment  $\chi_{\text{rev}}$  en ajustant les points expérimentaux par une courbe en  $1/(\alpha + \gamma(H - H_0)^2)$ . Le terme  $\beta(H - H_0)$  introduit dans la courbe d'ajustement dans la section 6.2.1 n'est pas pris en compte ici du fait d'un nombre de points expérimentaux réduits. Le contribution irréversible  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$  est donnée comme précédemment par  $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}} - \chi_{\text{rev}}$ , avec  $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$  la dérivée du cycle majeur.

On met en évidence que les événements irréversibles sont centrés sur  $\mu_0 H = -70\text{mT}$ . La contribution réversible est centrée sur  $\mu_0 H = 0$  ce qui nous amène à

penser que les contributions réversible et irréversible sont associées à des événements indépendants. A partir de cette hypothèse et en supposant que chaque particule est indépendante des autres, on peut reconstruire les cycles mineurs à partir de la relation 6.1.

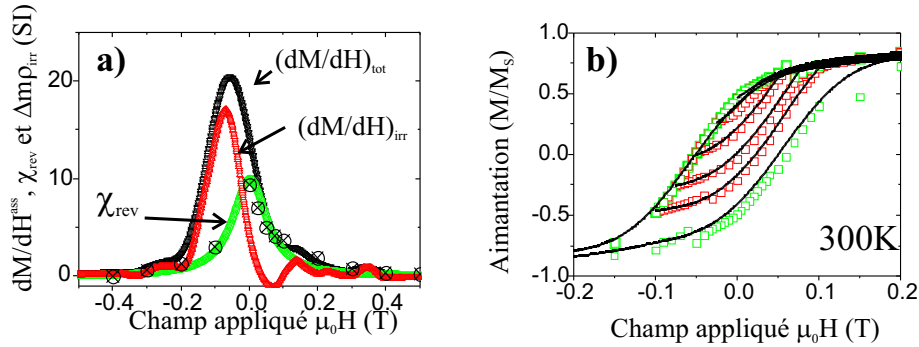


FIG. 6.12 – (a) Contributions réversible ( $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$ ) et irréversible ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{irr}}^{\text{ass}}$ ) à la variation d'aimantation en champ décroissant et variation d'aimantation totale ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$ ) de l'assemblée d'îlots plats allongés de la Figure 6.9b.  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H)$  est une interpolation à partir des points expérimentaux mesurés à l'origine de cycles mineurs ( $\otimes$ ). (b) Cycles mineurs mesurés à 300K suivant l'axe facile Fe[001] ( $\square$ ), et cycles simulés à partir de  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irr}}^{\text{ass}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  de la Fig.a.

Les cycles mineurs prédits et expérimentaux sont comparés sur la Figure 6.12b. On trouve à nouveau un très bon accord et nous pouvons dès lors décrire le magnétisme de l'échantillon à 300K de la manière suivante. Deux contributions magnétiques sont à dissocier : La première contribution correspond à des événements principalement irréversibles et peut être associée aux bandes de Fe alignées suivant [001] présentant une distribution de champ de retournement centrée sur  $-70\text{mT}$ . Les cycles d'hystérésis associés sont quasiment carrés avec un champ coercitif correspondant à  $\simeq 50\%$  du champ d'anisotropie  $H_a \simeq 150\text{mT}$ ; l'écart à un retournement cohérent décroît par rapport aux autres systèmes (îlots compacts, fils allongés), ce qui se comprend du fait d'une épaisseur des bandes plus faibles et donc d'un rôle du dipolaire encore réduit. La deuxième contribution est essentiellement réversible et pourrait correspondre à la couche continue de mouillage de 2HA. On peut estimer d'après les mesures magnétiques que la contribution réversible correspond à 45% de la quantité de Fer, ce qui est compatible avec les volumes déterminés à partir des images AFM.

### 6.3 Discussion et conclusion

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord considéré les cycles d'hystérésis d'assemblées d'îlots 3D compacts. Nous avons mis en évidence l'apparition d'un état rémanent non nul et d'un champ coercitif non nul lorsque les dimensions moyennes des îlots sont inférieures à  $500\text{nm} \times 300\text{nm} \times 50\text{nm}$ . L'aimantation rémanente et la valeur du champ coercitif mesurés augmentent ensuite pour des dimensions moyennes décroissantes. Pour l'assemblée d'îlots de dimensions moyennes  $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$ , nous avons mesuré une aimantation rémanente  $M_r/M_s \simeq 0.55$  et un champ coercitif  $\mu_0 H_c \simeq 50\text{mT}$ . Cette tendance à aller vers des cycles d'hystérésis plus larges est habituelle lorsque les dimensions des îlots sont diminués. Notons que l'observation d'une aimantation rémanente pour une assemblée d'îlots compacts de Fe caractérisés par  $\bar{L} = 500\text{nm}$  peut paraître contradictoire avec les mesures de micro-SQUID et les simulations numériques présentées dans la Section 5.3 puisque nous avons alors montré qu'un îlot de taille  $420\text{nm} \times 200\text{nm} \times 30\text{nm}$  présente une aimantation rémanente nulle. Son champ de nucléation,  $\mu_0 H_{\text{nuc}} \simeq 10\text{mT}$  est cependant fortement réduit par rapport au champ de nucléation d'un îlot compact de taille  $600\text{nm} \times 300\text{nm} \times 60\text{nm}$  pour lequel  $\mu_0 H_{\text{nuc}} \simeq 60\text{mT}$ . Si on suppose que cette évolution se poursuit pour des îlots plus petits, on peut estimer que la taille critique pour laquelle un îlot compact présentera une aimantation rémanente non nulle (équivalent à  $\mu_0 H_{\text{nuc}} < 0$ ) est proche de  $L_C \approx 400\text{nm}$ . Du fait de la distribution de taille des îlots compacts, une assemblée d'îlots caractérisée par  $\bar{L} = 500\text{nm}$  est composée en partie d'îlots tels que  $L < L_C$ , ce qui explique l'observation d'un état rémanent pour le cycle d'hystérésis macroscopique. Dans cette hypothèse, la rémanence est reliée à la proportion d'îlots de forte rémanence, qui augmente avec la diminution des dimensions des îlots compacts.

Les îlots allongés de  $5\text{nm}$  de haut et les bandes de Fe de  $1\text{nm}$  de haut présentent aussi des cycles d'hystérésis avec une aimantation rémanente et un champ coercitif élevé. Un tel comportement magnétique était prévisible de fait de la hauteur réduite des îlots, combinée avec un rapport d'aspect latéral important qui stabilisent l'aimantation selon la grande direction des îlots. Il faut noter que pour les échantillons mesurés dans le cadre de ce travail, la direction des marches de la couche tampon, qui impose la direction d'allongement des îlots et des bandes, correspond également à la direction Fe[001]. L'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie magnétique d'interface, qui favorisent la direction [001] ([Fruchart98c]) renforcent donc l'anisotropie de forme et contribuent à l'alignement de l'aimantation suivant la direction [001], et par conséquent à un champ coercitif et une aimantation rémanente élevés.

L'analyse qualitative des cycles d'hystérésis macroscopiques est donc satisfaisante. L'apparition d'une aimantation rémanente et d'un champ coercitif non nul s'explique notamment par la réduction de taille des nanostructures et leur aspect aplati. L'étude plus détaillée des cycles d'hystérésis macroscopiques que nous avons

débutés montre cependant que le comportement magnétique des échantillons n'est en fait pas trivial. L'analyse par la méthode de séparation des contributions réversible et irréversible nous apporte certes des précisions sur le mode de retournement dans les assemblées de particules considérées, mais soulèvent également des interrogations.

Nous avons mis en évidence que la forme des cycles d'hystérésis pour les différentes assemblées étudiées correspond à la superposition de deux contributions magnétiques indépendantes. La première contribution est associée à des particules dont le mode de retournement est essentiellement irréversible avec une distribution de champ de retournement centrée sur  $\mu_0 H \approx -70 \text{mT}$ . Suivant les systèmes considérés, cette contribution peut être attribuée aux îlots compacts, aux îlots allongés de 5nm de haut, ou aux bandes de Fe de 1nm de haut. La seconde contribution est essentiellement réversible et son origine n'est pas évidente.

Les îlots allongés et des bandes de Fe reposent sur deux plans atomiques de mouillage. La contribution réversible pourrait donc provenir de ces couches de mouillage. Les propriétés magnétiques de 2 plans ou 1 plan atomique de Mo/Fe/Mo(110) ne sont cependant pas connues. Pour que la couche de mouillage puissent expliquer la contribution réversible, il faudrait qu'elle soit paramagnétique ou superparamagnétique à température ambiante. Des études poussées ont été rapportées sur le magnétisme des couches ultra-minces de Fe sur W(110) qui ont montré que dans ce cas de dépôt à température ambiante, la monocouche de Fe non recouverte a une température de Curie de 220K, et la bicouche de Fe une température de Curie de 450K [Przybylski89, Elmers95, Gradmann93]. Leurs propriétés sont par ailleurs très dépendantes des contraintes, des adsorbats et donc du mode de croissance [Gradmann93, Dürkop97]. Ces valeurs ne sont données qu'à titre indicatif et ne peuvent pas être appliquées aux système Fe/Mo(110) pour lequel les propriétés magnétiques sont différentes [Fruchart99b].

Lors d'un dépôt de Fe à 700K, nous avons vu dans la Section 2.2 qu'il se forme d'une part des îlots compacts au dessus d'un plan mono-atomique de mouillage, mais également des îlots biseautés, qui coalescent pour des taux de couverture suffisants pour former entre les îlots compacts une couche quasi-continue de 1nm d'épaisseur. Comme pour les îlots allongés, on peut envisager que la contribution réversible observée soit attribuable au plan atomique de mouillage supposé paramagnétique, ou aux îlots biseautés (ou couche quasi-continue) de 1nm d'épaisseur. Les études réalisées sur des couches continues de Mo/Fe/Mo(110) déposées à 300K montrent qu'une couche d'épaisseur  $\approx 0.75 \text{nm}$  est superparamagnétique à 300K avec une température de blocage de l'ordre de 150K. Une couche d'épaisseur  $\approx 1 \text{nm}$  est ferromagnétique à 300K et son champ coercitif présente une forte dépendance avec la température. Compte tenu de la différence de préparation, il est envisageable que les structures de 1nm d'épaisseur puissent être superparamagnétiques à température ambiante et par conséquent apportent une contribution réversible à la variation d'aimantation de

l'échantillon. Cependant, cette couche devrait être ordonnée magnétiquement à 10K ce qui, contrairement à ce que nous avons mesuré, se traduirait par une diminution de la composante réversible au profit de la composante irréversible. Par ailleurs, on note que des premières mesures magnétiques sur une couche quasi-continue de Fe déposée à 300K puis recuite à 700K, ou sur des bandes de Fe auto-organisées sur Mo(110) et orientées à  $45^\circ$  de la direction [001] n'ont pas montré de signal magnétique à 300K, ni à 10K, dans la limite de résolution expérimentale. L'ensemble de ces observations impliquerait que les structures de 1nm d'épaisseur pourrait ne pas être magnétique. Cette hypothèse n'est cependant pas compatible avec les mesures magnétiques obtenues sur les bandes de Fe de hauteur 1nm et orientées suivant [001]...

L'analyse détaillée des cycles d'hystérésis révèle ainsi la complexité de ces systèmes. Les premières mesures dont nous disposons actuellement ne sont pas suffisantes pour comprendre de manière univoque l'origine de la contribution réversible mise en évidence expérimentalement. Cette analyse nécessiterait une étude plus approfondie de la dépendance des cycles d'hystérésis en fonction de la température, et de pouvoir caractériser de manière indépendante les propriétés magnétiques des couches de mouillage ou des structures de 1nm.

# Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était l'élaboration et l'étude du retournement d'aimantation de particules magnétiques modèles de Fe épitaxiées sur Mo(110)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0).

Pour la fabrication des particules, nous avons choisi la technique d'auto-assemblage. Nous avons donc étudié en détail la croissance de Fe sur Mo(110) sous ultra-vide par Dépôt Laser Pulsé. En fonction de la température de dépôt, nous avons mis en évidence deux régimes de croissance distincts qui permettent la fabrication de deux types de particules modèles : des îlots 3D compacts de taille sub-micronique et des nano-bandes de Fe auto-organisées sur un substrat faiblement vicinal de Mo(110). Dans le cadre de cette thèse, nous avons plus particulièrement étudié les propriétés magnétiques des îlots 3D compacts de taille juste sub-micronique. La caractérisation des propriétés magnétiques de ces particules modèles a été réalisée en combinant des techniques de mesure macroscopique, des techniques de mesure de particules individuelles (MFM et micro-SQUID) et des simulations micromagnétiques. Avec la combinaison de ces différentes techniques, nous arrivons à une description détaillée des processus de retournement pour une particule individuelle, en fonction de ses caractéristiques morphologiques et structurales qui sont très bien définies.

## Croissance de Fe/Mo(110)

Une première partie de ce travail de thèse correspond à l'étude systématique de la croissance épitaxiale de Fe/Mo(110) sous UHV par DLP. Cette étude a permis d'affiner les connaissances de la littérature concernant la croissance de couches continues, et d'étudier en détail les différentes méthodes permettant d'auto-assembler des nanostructures (plots, bandes).

En fonction de la température de croissance  $T_s$ , deux régimes de croissance ont été observés, la température de transition se trouvant approximativement à  $T_s = 550\text{K}$ .

Dans le *régime haute température* ( $T_s > 600\text{K}$ ), la croissance s'effectue suivant un mode Stranski-Krastanov : après la complétion d'un plan atomique pseudomorphe de mouillage, nous avons mis en évidence la formation de nanostructures tridimensionnelles. Cependant, contrairement au mode Stranski-Krastanov habituel, nous

avons observé une population bimodale d'îlots présentant des densités et des modes de croissance différents.

Les îlots les plus denses ( $\approx 1.5 \times 10^{-6} \text{nm}^{-2}$ ) sont plats avec une hauteur moyenne de  $\simeq 1 \text{nm}$  et croissent par expansion latérale jusqu'à former une couche quasi-continue pour  $\Theta \simeq 2 \text{nm}$ .

La deuxième catégorie d'îlots a une croissance 5 fois plus rapide en volume avec une densité de  $\approx 0.25 \times 10^{-6} \text{nm}^{-2}$ . Ces nanostructures, toutes de caractéristiques morphologiques semblables, nucléent de façon aléatoire à la surface de Mo(110), et forment donc un ensemble d'*îlots épitaxiés auto-assemblés*. Ces îlots présentent une forme compacte et les côtés des îlots correspondent à des plans cristallographiques parfaits du Fer bcc. Nous avons démontré par le calcul que leur forme caractéristique et leurs rapports d'aspect correspondent à la forme d'équilibre qui minimise l'énergie de surface/interface d'un îlot de Fe. Leur densité et leurs caractéristiques géométriques varient légèrement avec la température de dépôt probablement du fait de différences de cinétique. Les dimensions des nanostructures peuvent être contrôlées par le biais du taux de couverture avec une relativement faible distribution. La taille des îlots varie de  $1200 \text{nm} \times 640 \text{nm} \times 195 \text{nm}$  pour  $\Theta \simeq 8 \text{nm}$  à  $275 \text{nm} \times 200 \text{nm} \times 35 \text{nm}$  pour  $\Theta \simeq 0.35 \text{nm}$ . Du fait de leur forme régulière et très bien définie, ces îlots se présentent en définitive comme des systèmes modèles pour les études magnétiques.

A *température modérée* ( $300 \text{K} \leq T_s \leq 600 \text{K}$ ), la croissance de Fe sur Mo(110) diffère de la croissance à haute température du fait de limitations cinétiques. De 300K à 400K, ces limitations cinétiques permettent d'obtenir des couches continues de Fe. Un recuit à haute température ( $T_{\text{rec}} > 600 \text{K}$ ) entraîne de fortes modifications structurales qui permettent la relaxation des contraintes résiduelles. Nous avons mis en évidence pour le système Fe/Mo(110) qu'il existe une épaisseur métastable  $e_{\text{met}}$ , telle que pour des taux de couverture  $2\text{MC} < \Theta < e_{\text{met}}$ , il ne se forme par recuit que des structures présentant cette épaisseur sur une couche de mouillage de 2 plans atomiques. Son origine est attribuée à une réduction optimum des contraintes élastiques, même si le rôle d'un alliage à l'interface ne peut pas être complètement écarté. Nous avons constaté que  $e_{\text{met}}$  ne dépend pas de la température de recuit, mais passe de 6MC pour un dépôt avant recuit à  $T_s = 300 \text{K}$ , à 8MC pour un dépôt initial à  $T_s = 400 \text{K}$ . Il existe une gamme de taux de couverture pour laquelle le recuit induit la formation de bandes de Fer disjointes, alignées le long des marches atomiques de la couche tampon de Mo(110), sur une couche continue de 2 hauteurs atomiques (HA). Nous avons montré que cette méthode permet de fabriquer des *bandes auto-organisées de Fe* de 1.2nm à 1.5nm de hauteur et dont l'orientation, l'espacement, la largeur peuvent être contrôlés à partir de la désorientation du substrat de saphir et du taux de couverture de Fe. Un dépôt directement à 500K permet également d'obtenir des nanostructures de Fe allongées sur une couche de 2HA de mouillage. Ce mode de croissance est également obtenu du fait de limitations cinétiques pour

la diffusion du fer au passage des marches atomiques, qui conduisent à la formation d'*îlots plats allongés le long des marches de Mo(110)*. Ces structures ont une forme moins régulière que par la méthode de dépôt à 300K ou 400K suivi d'un recuit, mais elles ont l'avantage de présenter une hauteur plus importante, de 5nm.

### Propriétés magnétiques

Du fait de leurs caractéristiques morphologiques et structurales très bien définies, les îlots 3D compacts sont un système modèle pour l'étude du retournement d'aimantation d'une particule individuelle. Nous avons plus spécifiquement étudié le comportement magnétique d'îlots 3D épitaxiés de taille juste sub-micronique (600nm × 300nm × 60nm).

Les îlots présentent une anisotropie dominée par la forme, avec un axe de plus facile aimantation correspondant à la grande longueur des îlots, c'est à dire à la direction planaire Fe[001]. Les observations MFM à la rémanence après saturation suivant l'axe facile mettent en évidence l'existence de configurations multidomaines avec fermeture de flux qui sont identifiées soit à une structure de type Bloch, soit à une structure de type diamant, soit à une troisième configuration non identifiée. La simulation micromagnétique effectuée sur des îlots de forme approchée (cylindres à base hexagonale allongée : "hexaplot") permet de retrouver les deux configurations Bloch et Diamant. Nous avons montré que l'apparition de l'une ou l'autre des configurations est pilotée aux premiers stades de retour en champ par une brisure de symétrie. Les simulations numériques montrent qu'une perturbation minimale, de symétrie contrôlée, suffit à entraîner la modification du mode de retournement, expliquant l'observation simultanée par MFM des deux configurations. Inversement, nous montrons qu'il faut être prudent dans l'interprétation des configurations obtenues et du fait de la symétrie excessive des simulations, il apparaît important de briser toutes les symétries du problème pour éviter un blocage numérique du retournement. Au cours de ce travail, nous avons testé numériquement plusieurs dissymétrisations : désorientations du champ par rapport à l'axe facile, utilisation d'un gradient de champ ou d'une forme dissymétrique. Au niveau expérimental, il existe de multiples sources possibles qui peuvent influencer la brisure de symétrie : activation thermique, désalignement du champ, interactions dipolaires entre particules, défauts de forme ou rugosité...

Nous avons étudié également la dépendance angulaire des champs de saut de nucléation  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$  et d'annihilation  $H_{\text{ann}}(\varphi)$ , expérimentalement par micro-SQUID et par des simulations micromagnétiques. Pour les mesures micro-SQUID, nous avons mis au point une procédure de fabrication des micro-SQUID directement sur les îlots épitaxiés de Fe, permettant d'une part de s'assurer d'un bon couplage entre la particule et le micro-SQUID, et d'autre part de pouvoir sélectionner une particule modèle

présentant des caractéristiques morphologiques très bien caractérisées. Les simulations montrent un accord qualitatif reproduisant d'une part les cycles d'hystérésis, et d'autre part la bifurcation vers deux configurations micromagnétiques différentes pour un angle de champ compris entre  $40^\circ$  et  $50^\circ$ , et qui se traduit par une rupture de  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$ . Nous avons montré qu'une telle discontinuité de  $H_{\text{nuc}}(\varphi)$  ne doit pas nécessairement être imputée à des "défauts", puisque dans le cas des plots modèles de Fer elle est une conséquence de propriétés intrinsèques de l'îlot ; elle résulte de la forme des plots et de la possibilité d'existence de configurations non uniformes.

A partir de mesures macroscopiques, nous avons aussi considéré l'évolution des propriétés magnétiques des îlots compacts en fonction de leur taille. Pour des assemblées d'îlots de dimensions inférieures à  $500\text{nm} \times 300\text{nm} \times 50\text{nm}$ , les cycles d'hystérésis montrent une rémanence et un champ coercitif croissants. Cette évolution est attribuée à la réduction de taille des îlots et nous avons pu estimer que la taille critique pour laquelle apparaît un état rémanent dans ces structures est proche de  $400\text{nm} \times 200\text{nm} \times 40\text{nm}$ . Le comportement magnétique d'îlots compacts de taille  $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$  a été étudié en détail en appliquant une méthode d'analyse des cycles macroscopiques basée sur la séparation des contributions réversible et irréversible. Le cycle moyen d'un îlot s'avère correspondre à un cycle presque carré avec une distribution de champ de retournement centrée sur  $\mu_0 H \simeq 75\text{mT}$ . Il se superpose une contribution indépendante et réversible dont l'origine n'a pas pu être formellement identifiée. Elle pourrait provenir de la contribution du plan monoatomique de mouillage ou des îlots (ou couche quasi-continue) de  $1\text{nm}$  d'épaisseur qui se forment entre les îlots compacts. Pour continuer cette étude il sera intéressant d'étudier séparément le magnétisme de la couche de mouillage ou des îlots de  $1\text{nm}$  d'épaisseur, qui n'est pas connu pour le système Fe/Mo(110). Notons enfin qu'il serait intéressant d'étendre l'étude du retournement d'une particule isolée, en combinant des mesures locales et des simulations, à ces îlots de dimensions plus petites, avec effectivement la possibilité d'étudier l'évolution du mode de retournement en fonction de la taille des particules.

Le même type d'étude fondée sur l'analyse des cycles d'hystérésis macroscopiques a été menée sur les îlots allongés de  $5\text{nm}$  de haut et sur les bandes auto-organisées de Fer. Les premières mesures magnétiques que nous avons réalisées correspondent à un cas particulier où l'orientation des îlots est parallèle à la direction cristallographique Fe[001]. Dans cette géométrie, les anisotropies magnétocristallines et d'interface renforcent l'anisotropie de forme pour stabiliser l'aimantation dans la direction [001]. Dans ces conditions, nous avons mis en évidence que ces structures se retournent à  $300\text{K}$  de manière non couplée avec un cycle d'hystérésis moyen environ carré et un champ coercitif élevé ( $H_r/H_a \approx 0.5$ ). Les cycles d'hystérésis macroscopiques révèlent aussi l'existence d'une contribution magnétique réversible

indépendante. Celle-ci pourrait être attribuée à la couche de mouillage de 2HA sur laquelle croissent les îlots allongés ou les bandes de Fe. Il sera intéressant de le vérifier en étudiant les propriétés magnétiques d'une couche de 2HA de Fe/Mo(110) qui ne sont également pas connues. Finalement, la possibilité au niveau de la croissance de contrôler la largeur, l'espacement et l'orientation de ces nanostructures épitaxiées de Fe, ouvre de nombreuses perspectives quant à l'étude des propriétés magnétiques d'un système modèle formé de nano-bandes magnétiques auto-organisées.



# Bibliographie

- [Aharoni66] A. Aharoni, Phys. Stat. Sol. **16** (1966), 3.
- [Aharoni98] ———, *Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms*, J. Appl. Phys. **83** (1998), no. 6, 3432.
- [Albrecht93] M. Albrecht, H. Fritzsche, et U. Gradmann, *Kinetic facetting in homoepitaxy of Fe(110) on Fe(110)*, Surf. Sci. **294** (1993), 1.
- [Amar95] J. G. Amar et F. Family, *Critical cluster size : island morphology and size distribution in submonolayer epitaxial growth*, Phys. Rev. Lett. **74** (1995), no. 11, 2066.
- [Avouris90] P. Avouris, *Atom-resolved surface chemistry using the scanning tunneling microscope*, J. Phys. Chem. **94** (1990), 2246–2256.
- [Bartlet92] M. C. Bartlet et J. W. Evans, *Scaling analysis of the diffusion-mediated island growth in surface adsorption processes*, Phys. Rev. B **46** (1992), no. 19, 12675.
- [Bartlet96] M. C. Bartlet, S. Günter, E. Kupatzki, R. J. Behm, et J. W. Evans, *Island-size distributions in submonolayer epitaxial growth : influence of the mobility of small clusters*, Phys. Rev. B **53** (1996), 4099.
- [Belliard97] L. Belliard, A. Thiaville, S. Lemerle, A. Lagrange, et J. Miltat, *Investigation of the domain contrast in magnetic force microscopy*, J. Appl. Phys. **81** (1997), no. 8, 3849.
- [Bethge95] H. Bethge, D. Heuer, Ch. Jensen, K. Reshöft, et U. Köhler, *Misfit-related effects in the epitaxial growth of iron on W(110)*, Surf. Sci. **331-333** (1995), 878.
- [Binnig87] G. Binnig et H. Rohrer, *Scanning tunneling microscopy—from birth to adolescence*, Rev. Mod. Phys. **59** (1987), no. 3, 615.
- [Binnig82] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, et E. Weibel, *Surface studies by scanning tunneling microscopy*, Phys. Rev. Lett. **49** (1982), no. 1, 57–61.

- [Biorci58] G. Biorci et D. Pescetti, *Il Nuov. Cim.* VII (1958), 829, modèle de Preisach.
- [Bode98] M. Bode, M. Getzlaff, et R. Wiesendanger, *Spin-polarized vacuum tunneling into the exchange split surface state of Gd(0001)*, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998), no. 19, 4256.
- [Bouchiat01] V. Bouchiat, M. Faucher, C. Thirion, W. Wernsdorfer, T. Fournier, et B. Pannetier, *Josephson junctions and superconducting interferences devices made by local oxidation of niobium ultra-thin films*, *Appl. Phys. Lett.* **79** (2001), 123.
- [Brune95] H. Brune, K. Bromann, H. Röder, K. Kern, J. Jacobsen, P. Stolze, K. Jacobsen, et J. Nørskov, *Effect of strain on surface diffusion and nucleation*, *Phys. Rev. B* **52** (1995), no. 20, R14380.
- [Brune98a] H. Brune, *Microscopic view of epitaxial metal growth : nucleation and aggregation*, *Surf. Sci. Rep.* **31** (1998), 121.
- [Brune98b] H. Brune, M. Giovannini, K. Bromann, et K. Kern, *Self-organized growth of nanostructures arrays on strain-relief patterns*, *Nature* **394** (1998), 451.
- [Brune99] H. Brune, G. S. Bales, J. Jacobsen, C. Boragno, et K. Kern, *Measuring surface diffusion from nucleation island densities*, *Phys. Rev. B* **60** (1999), no. 8, 5991.
- [Bruno89] P. Bruno et J. P. Renard, *Magnetic surface anisotropy of transition metal ultrathin films*, *Appl. Phys.* **A49** (1989), 499.
- [Bucher94] J. P. Bucher, E. Hahn, P. Fernandez, C. Massobrio, et K. Kern, *Transition from one- to two-dimensionnal growth of Cu on Pd(110) promoted by cross-exchange migration*, *Europhys. Lett.* **27** (1994), 473.
- [Burger87] W. R. Burger et R. Reig, *An optimized in situ argon sputter cleaning process for device quality low temperature ( $T \leq 800^\circ\text{C}$ ) epitaxial silicon : bipolar transistor and pn junction characterization*, *J. Appl. Phys.* **62** (1987), no. 10, 4255.
- [Chambliss91] D. D. Chambliss, R. J. Wilson, et S. Chiang, *Nucleation of Ordered Arrays on Au(111) by surface-lattice dislocations*, *Phys. Rev. Lett.* **66** (1991), 1721.
- [Cherief93a] N. Cherief, D. Givord, A. Liénard, K. Mackay, O.F.K. McGrath, J.P. Rebouillat, F. Robaut, et Y. Souche, *Laser ablation deposition and magnetic characterization of metallic thin films based on rare earth and transition metals*, *J. Magn. Magn. Mater.* **121** (1993), 94.

- [Cherief93b] N. Cherief, D. Givord, O. F. K. McGrath, Y. Otani, et F. Robaut, *Laser ablation of metallic films and bilayers (Fe, rare earth and R/Fe bilayers)*, J. Magn. Magn. Mater. **126** (1993), 225.
- [Cheung98] J. T. Cheung et H. Sankur, CRC Crit. Rev. Solid State Mater. Sci. **15** (1998), 63.
- [Cowburn00] R. P. Cowburn, *Property variation with shape in magnetic nanoelements*, J. Phys. D : Appl. Phys. **33** (2000), R1.
- [Dürkop97] T. Dürkop, H. J. Elmers, et U. Gradmann, *Adsorption driven spin reorientation transition in sesquilayers of Fe(110) on W(110)*, J. Magn. Magn. Mat. **172** (1997), L1.
- [Elmers94] H. J. Elmers, J. Hauschild, H. Höche, U. Gradmann, H. Bethge, D. Heuer, et U. Köhler, *Submonolayer Magnetism of Fe(110) on W(110) : Finite Width Scaling of Stripes and Percolation between Islands*, Phys. Rev. Lett. **73** (1994), no. 6, 989.
- [Elmers95] H. J. Elmers, J. Hauschild, H. Fritzsche, G. Liu, U. Gradmann, et U. Köhler, *Magnetic frustration in ultrathin Fe films*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995), no. 10, 2031.
- [Escudier73] P. Escudier, Thèse d'état, Grenoble, 1973.
- [Fahler97] S. Fahler, M. Stormer, et H.U. Krebs, *Origin and avoidance of droplets during laser ablation of metals*, Appl. Surf. Sci. **109-110** (1997), 433.
- [Fernandez99] C. De Julian Fernandez, J. L. Vassent, et D. Givord, *Thin film deposition by magnetic field-assisted pulsed laser assembly*, Appl. Surf. Sci. **138-139** (1999), 150.
- [Fruchart98a] O. Fruchart, *Elaboration, étude et modélisation d'un système magnétique modèle : réseaux de plots sub-microniques ultraminces de Fe(110) épitaxié à anisotropie planaire*, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1998.
- [Fruchart98b] O. Fruchart, J.-P. Nozières, B. Kevorkian, J.C. Toussaint, D. Givord, F. Rousseaux, D. Decanini, et F. Carcenac, *High-coercivity in ultrathin epitaxial micrometer-sized particles with in-plane magnetization : Experiment and numerical simulation*, Phys. Rev. B **57** (1998), 2596.
- [Fruchart98c] O. Fruchart, J.P. Nozières, et D. Givord, *High coercivity in ultrathin epitaxial micrometer-sized particles with in-plane magnetization : Experimental and numerical simulation*, J. Magn. Magn. Mat. **57** (1998), no. 4, 2596.

- [Fruchart98d] O. Fruchart, S.Jaren, et J.Rothman, *Growth modes of W and Mo thin epitaxial (110) films on (11-20) sapphire*, Appl. Surf. Sci. **135** (1998), no. 1-4, 218-232, croissance Mo et W sur saphir.
- [Fruchart99a] O. Fruchart, J.P. Nozïeres, et D. Givord, *Growth and interface magnetic anisotropy of epitaxial Mo/Fe/Mo110 and W/Fe/W110 ultrathin films*, J. Magn. Magn. Mat. **207** (1999), 158.
- [Fruchart99b] O. Fruchart, W. Wernsdorfer, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, D. Mailly, D. Decanini, et F. Carcenac, *Arrays of ultrathin Fe(110) 200-nm-wide particles investigated by microSQUID measurements*, J. Magn. Magn. Mat. **198-199** (1999), 228.
- [Gambardella00] P. Gambardella, M. Blanc, H. Brune, K. Kuhnke, et K. Kern, *One-dimensional metal chains on Pt vicinal surfaces*, Phys. Rev. B **61** (2000), no. 3, 2254.
- [Gradmann82] U. Gradmann et G. Waller, *Periodic lattice distortions in epitaxial films of Fe(110) on W(110)*, Surf. Sci. **116** (1982), 539.
- [Gradmann90] U. Gradmann, H. J. Elmers, G. Liu, et M. Przybylski, *The ferromagnetic monolayer Fe(110) on W(110)*, Hyperfine interactions **57** (1990), 1845.
- [Gradmann93] U. Gradmann, *Handbook of magnetic materials*, vol. 7, ch. Magnetism in ultrathin transition metal films, p. 1, Elsevier Science Publishers B.V., North Holland, 1993.
- [Hauschild98a] J. Hauschild, *Morphologie und magnetismus ultradünner eisenfilme auf vizinalem Wolfram(110)*, Thèse, Université Clausthal, 1998.
- [Hauschild98b] J. Hauschild, H. J. Elmers, et U. Gradmann, *Dipolar superferromagnetism in monolayer nanostripes of Fe(110) on vicinal W(110) surfaces*, Phys. Rev. B **57** (1998), no. 2, R677.
- [Hauschild98c] J. Hauschild, U. Gradmann, et H. J. Elmers, *Perpendicular magnetization and dipolar antiferromagnetism in double layer nanostripe arrays of Fe(110) on W(110)*, Appl. Phys. Lett. **72** (1998), no. 24, 3211.
- [Henkel64] O. Henkel, Phys. Stat. Sol. (1964), 7919.
- [Hubert98] A. Hubert et R. Schafer, *Magnetic domains. The analysis of magnetic microstructures*, springer-verlag ed., Berlin, Germany, 1998.
- [Jamet01] M. Jamet, W. Wernsdorfer, C. Thirion, D. Mailly, V. Dupuis, P. Mélinon, et A.Pérez, *Magnetic anisotropy of individual cobalt clusters*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 4676.

- [Jaren97] S. Jaren, E. du Tremolet de Lacheisserie, D. Givord, et C. Meyer, *Pulsed laser deposition epitaxial growth and magnetic properties of TbCo<sub>2</sub> and TbFe<sub>2</sub> ultrathin films*, J. Magn. Mater. **165** (1997), 172.
- [Jenniches96] H. Jenniches, M. Klaua, H. Höche, et J. Kirschner, *Comparison of pulsed laser deposition and thermal deposition : improved layer by layer growth of Fe/Cu(111)*, Appl. Phys. Lett. **69** (1996), no. 22, 3339.
- [Jenniches99] H. Jenniches, J. Shen, Ch. V. Mohan, S. Sundar Manoharan, J. Barthel, P. Ohresser, M. Klaua, et J. Kirschner, *Structure and magnetism of pulsed-laser-deposited ultrathin films of Fe on Cu(100)*, Phys. Rev. B **59** (1999), no. 2, 1196.
- [Jesser67] W. A. Jesser et D. Kuhlmann-Wilsdorf, Phys. Stat. Sol. **19** (1967), 65.
- [Kern91] K. Kern, H. Niehus, A. Schatz, P. Zeppenfeld, J. George, et G. Comsa, *Long range spatial self-organization in the adsorbate induced restructuring of surface : Cu{110} – (2x1)O*, Phys. Rev. Lett. **67** (1991), no. 7, 855.
- [Kevorkian98] B. Kevorkian, *Contribution à la modélisation du retournement de l'aimantation - Applications à des systèmes magnétiques nanostructurés ou de dimensions réduites*, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1998.
- [Kirby72] R. K. Kirby, T. A. Hahn, et B. D. Rothrock, *American Institute of Physics Handbooks*, ch. Thermal expansion, pp. 4f.4–119, Mc Graw-Hill Book Company, 1972.
- [Leibsl93] F. M. Leibsl, C. F. J. Flipse, et A. W. Robinson, *Structure of the Cu{100}-c(2x2)N surface : a scanning tunneling microscopy study*, Phys Rev. B **47** (1993), no. 23, 15865.
- [Mahan90] J. E. Mahan, K. M. Geib, G. Y. Robinson, et R. G. Long, *A review of the geometrical fundamentals of reflection high energy electron diffraction with application to silicon surfaces*, J. Vac. Sci. Technol. **A8** (1990), no. 5, 3692.
- [Malzbender98] J. Malzbender, M. Przybylski, J. Giergiel, et J. Kirschner, *Epitaxial growth of Fe on Mo110 studied by scanning tunneling microscopy*, Surf.Sci. **414** (1998), 187.
- [Massies94] J. Massies et N. Grandjean, *Oscillation of the lattice relaxation in layer-by-layer epitaxial growth of highly strained materials*, Phys. Rev. Lett. **71** (1994), no. 9, 1411.

- [Mayergoys91] I. D. Mayergoys, *Mathematical models of hysteresis*, Springer-Verlag, New-York, 1991.
- [Müller98] P. Müller et R. Kern, *Equilibrium shape of epitaxially strained crystals (Volmer-Weber case)*, J. Cryst. Growth **193** (1998), 257-270.
- [Mo89] Y.-W. Mo, B. S. Swartzentruber, R. Kariotis, M.B. Webb, et M. G. Lagally, *Growth and equilibrium structures in the epitaxy of Si on Si(001)*, Phys. Rev. Lett. **63** (1989), no. 21, 2393.
- [Mo90] Y.-W. Mo, D. E. Savage, B. S. Swartzentruber, et M. G. Lagally, *Kinetic pathway in Stranski-Krastanov growth of Ge on Si(001)*, Phys. Rev. Lett. **65** (1990), no. 8, 1020.
- [Nagai88] I. Nagai, T. Takahagi, A. Ishitani, H. Kuroda, et M. Yoshikawa, J. Appl. Phys. **64** (1988), no. 10, 5183.
- [Nishi99] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, et J.S. Lee, *A narrow photoluminescence linewidth of 21meV at 1.35 $\mu$ m from strain-induced InAs quantum dots covered by In<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As grown on GaAs substrate*, Appl. Phys. Lett. **74** (1999), no. 8, 1111.
- [Ohresser99] P. Ohresser, J. Shen, J. Barthel, M. Zheng, Ch. V. Mohan, M. Klaua, et J. Kirschner, *Growth, structure and magnetism of fcc Fe ultrathin films on Cu(111) by pulsed laser deposition*, Phys. Rev. B **59** (1999), no. 5, 3696.
- [Orozco99] E. Bonet Orozco, *Retournement de l'aimantation des nanoaimants*, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1999.
- [Osborn45] J. A. Osborn, *Demagnetizing factors of the general ellipsoid*, Phys. Rev. **67** (1945), no. 11-12, 351-357.
- [Przybylski89] M. Przybylski, I. Kaufmann, et U. Gradmann, *Mössbauer analysis of ultrathin ferromagnetic Fe(110) films on W(110) coated by Ag*, Phys. Rev. B **40** (1989), no. 13, 8631, Magnetisme monocouche Fe/W.
- [Rave98] W. Rave, K. Fabian, et A. Hubert, *Magnetic state of small cubic particles with uniaxial anisotropy*, J. Magn. Magn. Mat. **190** (1998), 332.
- [Rave00] W. Rave et A. Hubert, *Magnetic ground state of a thin-film element*, IEEE transactions on magnetics **36** (2000), no. 6, 3886.
- [Röder93] H. Röder, E. Hahn, H. Brune, J.-P. Bucher, et K. Kern, *Building one- and two- dimensional nanostructures by diffusion controlled aggregation at surfaces*, Nature **366** (1993), 141.

- [Reuter98] D. Reuter, G. Gerth, et J. Kirschner, *Anisotropic diffusion of 3d metals on W(110) : competition between crystalline structure and surface steps*, Phys. Rev. B **57** (1998), 2520.
- [Robaut95a] F. Robaut, *Elaboration par Dépôt Laser Pulsé et caractérisation de couches minces épitaxiées de terres rares et de composés intermétalliques terre rare-cobalt*, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1995.
- [Robaut95b] F. Robaut, P. Milkulik, N. Cherief, O. F. K. McGrath, D. Givord, T. Baumbach, et J. Y. Veuillen, *Epitaxial growth and characterization of  $Y_2Co_{17}(0001)$  thin films deposited on W(110)*, J. Appl. Phys. **78** (1995), no. 2, 997.
- [Rohrer] H. Rohrer, *Scanning tunneling microscopy - methods and variations*, NATO ASI, p. 1, Kluwer Academic Publishers.
- [Rugar90] D. Rugar, H. J. Mamin, P. Guethner, S. E. Lambert, J. E. Stern, I. McFadyen, et T. Yogi, *Magnetic force microscopy : General principles and application to longitudinal recording media*, J. Appl. Phys. **68** (1990), no. 3, 1169.
- [Sander96] D. Sander, R. Skomski, C. Schmidthals, A. Enders, et J. Kirschner, *Film stress and domain wall pinning in sesquilayer iron films on W(110)*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), no. 12, 2566.
- [Sander98a] D. Sander, A. Enders, C. Schmidthals, D. Reuter, et J. Kirschner, *Mechanical stress and magnetism of ferromagnetic monolayers*, Surf. Sci. **402-404** (1998), 351.
- [Sander98b] D. Sander, R. Skomski, A. Enders, C. Schmidthals, D. Reuter, et J. Kirschner, *The correlation between mechanical stress and magnetic properties of ultrathin films*, J. Phys. D : Appl. Phys. **31** (1998), 663.
- [Sander99] D. Sander, A. Enders, et J. Kirschner, *Stress and magnetic properties of surfaces and ultrathin films*, Rep. Prog. Phys. **62** (1999), 809.
- [Sankur89] H. Sankur, W. J. Gunning, J. Denatale, et J.F. Flintuff, *High quality optical and epitaxial Ge films formed by laser evaporation*, J. Appl. Phys. **65** (1989), no. 6, 2475.
- [Stoner91] E. C. Stoner et E. P. Wohlfarth, IEEE Trans. Mag. (1991), 3475.
- [Störmer95] M. Störmer et H. U. Krebs, CRC Crit. Rev. Solid State Mater. Sci. **78** (1995), 7080.
- [Stroschio94] J. A. Stroschio et D. T. Pierce, *Scaling of diffusion-mediated island growth in iron-on-iron homoepitaxy*, Phys. Rev. B **49** (1994), no. 12, 8522.

- [Tersoff85] J. Tersoff et D.R. Hamann, *Theory of the scanning tunneling microscope*, Phys. Rev. B **31** (1985), no. 2, 805.
- [Tersoff93] J. Tersoff et R. M. Tromp, *Shape transition in growth of strained islands : spontaneous formation of quantum wires*, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), 2782.
- [Thamm98] S. Thamm et J. Hesse, *The remanence of a Stoner-Wohlfarth particle ensemble as a function of demagnetization process*, JMMM **184** (1998), 245.
- [Thomas97] L. Thomas, *Contribution à l'étude de nanostructures magnétiques : du matériau nanocristallisé à l'agrégat*, Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble, 1997.
- [Tikhov90] M. Tikhov et E. Bauer, *Growth, structure and energetics of ultra-thin ferromagnetic single crystal films on Mo(110)*, Surf. Sci. **232** (1990), no. 1-2, 73.
- [Touloukian] Y. S. Touloukian, R. K. Kirby, R. E. Taylor, et P. D. Desai, *Thermal expansion-Metallic elements and Alloys*, vol. 12, ch. Thermal expansion, IFI/Plenum.
- [Toussaint] J.C. Toussaint, *LN LUA Program*.
- [Toussaint98] J.C. Toussaint, B. Kervorkian, O. Fruchart, et J. Voiron, *Magnetization reversal in thin films and small particles*, Proceedings of the tenth international symposium on magnetic anisotropy and coercivity in rare-earth transition metal alloys, Dresden, Germany 1998, 1998.
- [van den Berg85] H. A. M. van den Berg, *Self-consistent domain theory in soft ferromagnetic media. I. Solenoidal distributions in elliptical thin-film elements*, J. Appl. Phys. **57** (1985), no. 6, 2168.
- [van den Berg86] ———, *Self-consistent domain theory in soft ferromagnetic media. II. Basic domain structures in thin-film objects*, J. Appl. Phys. **60** (1986), no. 3, 1104.
- [van den Berg87] ———, *Self-consistent domain theory in soft ferromagnetic media. III. Composite domain structures in thin-film objects*, J. Appl. Phys. **62** (1987), no. 5, 1952.
- [van Schendel00] P. J. A. van Schendel, H. J. Hug, S. Martin, et H.-J. Güntherodt, *A method for the calibration of magnetic force microscopy tips*, J. Appl. Phys. **88** (2000), no. 1, 435.
- [Venables73] J. A. Venables, *Rate equation approaches to thin film nucleation kinetics*, Phil. Mag. **17** (1973), 697.

- [Venables84] J. A. Venables, G.D.T. Spiller, et M. Hanbücken, *Nucleation and growth of thin films*, Rep. Prog. Phys. **47** (1984), 399.
- [Villain92a] J. Villain, A. Pimpinelli, L. Tang, et D. Wolf, *Terrace sizes in molecular beam epitaxy*, J. Phys. I France **2** (1992), 2107.
- [Villain92b] J. Villain, A. Pimpinelli, et D. Wolf, *Layer by layer growth in Molecular Beam Epitaxy*, Comments Cond. Matt. Phys. **16** (1992), no. 1, 1.
- [Vitos98] L. Vitos, A. V. Ruban, H. L. Skriver, et J. Kollàr, *The surface energy of metals*, Surf. Sci. **411** (1998), 186.
- [Voigtländer91] G. Voigtländer, G. Meyer, et N. M. Amer, *Epitaxial growth of thin magnetic cobalt films on Au(111) studied by STM*, Phys. Rev. B **44** (1991), no. 18, 10354.
- [Wernsdorfer95a] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, G. Cernicchiaro, D. Mailly, B. Barbara, et L. Thomas, *Measurement of the Dynamics of the Magnetization Reversal in Individual Single-Domain Co Particles*, J. Magn. Magn. Mat. **151** (1995), 38.
- [Wernsdorfer95b] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas, et G. Suran, *DC-SQUID magnetization measurements of single magnetic particles*, J. Magn. Magn. Mat. **145** (1995), 33.
- [Wernsdorfer96a] W. Wernsdorfer, *Magnétométrie à micro-SQUID pour l'étude de particules ferromagnétiques isolées aux échelles sub-microniques*, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1996.
- [Wernsdorfer96b] W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Mailly, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-Ph. Ansermet, et B. Barbara, *Nucleation of the magnetization reversal in individual nanosized nickel wires*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 1873.
- [Wernsdorfer96c] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, J.-E. Wegrowe, L. Thomas, B. Barbara, et D. Mailly, *Dynamical measurement of domain wall nucleation and annihilation in individual amorphous Co particles*, Phys. Rev. B **53** (1996), 3341.
- [Wernsdorfer97a] W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit B. Barbara, N. Demoncy, A. Loiseau, D. Boivin, H. Pascard, et D. Mailly, *Experimental evidence of the Néel-Brown model of magnetization reversal*, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 1791.
- [Wernsdorfer97b] W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Mailly, O. Kubo, H. Nakano, et B. Barbara, *Macroscopic Quantum Tunneling of Magnetization of Single Ferrimagnetic Nanoparticles of Barium Ferrite*, Phys. Rev. Lett. **79** (1997), 4014.

- [Wernsdorfer99] W. Wernsdorfer et R. Sessoli, *Quantum Phase Interference and Parity Effects in Magnetic Molecular Clusters*, *Science* **284** (1999), 133.
- [Wernsdorfer01] W. Wernsdorfer, *Classical and quantum magnetization reversal studied in nanometer-sized particles and clusters*, *Adv. Chem. Phys.* **118** (2001), 99.
- [Wright96] C. D. Wright et E. W. Hill, *Reciprocity based transfer function analysis in magnetic force microscopy*, *Appl. Phys. Lett.* **68** (1996), no. 12, 1726.

# Liste des tableaux

2.1	Angles de diffraction pour différents plans et détermination des distances interréticulaires à partir des diagrammes de diffraction pour différents $\chi$ , $\Phi$ . Mis à part les plans (110) pour lesquels on peut distinguer les raies $K_{\alpha_1} = 1.5405\text{\AA}$ et $K_{\alpha_2} = 1.5443\text{\AA}$ , nous avons utilisé $\overline{K_{\alpha}} = 1.5418\text{\AA}$ pour la détermination des déformations. . . . .	67
2.2	Expansions thermiques entre 700K et 300K pour $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Mo, W et Fe d'après [Kirby72, Touloukian] . . . . .	68
2.3	Les différentes facettes pouvant intervenir dans la minimisation de l'énergie de surface/interface d'un cristal de fer bcc, et les densités d'énergie correspondantes, d'après [Vitos98] . . . . .	73
4.1	Grandeurs et longueurs magnétiques caractéristiques du Fer. . . . .	118
5.1	Comparaison des énergies d'anisotropie déterminées à partir des cycles d'hystérésis de la Figure 5.1, et des énergies dipolaires calculées pour des formes approchées présentées sur la Figure 5.2. Les énergies d'anisotropie magnétocristalline sont également reportées. L'énergie magnétostatique totale pour un objet uniformément aimanté est $E_d = 1.92 \times 10^6 \text{J/m}^3$ . . . . .	132
5.2	Comparaison des énergies des configurations de type Bloch et diamant	148



# Table des figures

1.1	Représentation schématique de trois modes essentiels de croissance cristalline : (a) croissance 2D ou mode Frank-van der Merwe, (b) croissance 2D puis 3D ou mode Stranski-Krastanov, (c) croissance 3D ou mode Volmer-Weber. $\Theta$ représente le taux de couverture en nombre de plans atomiques ( $HA$ ) . . . . .	19
1.2	Schéma représentant deux types de relaxations possibles des contraintes associées à un mode de croissance Stranski-Krastanov : (a) relaxation partielle par déformation élastique en bord d'îlots, (b) relaxation par introduction de dislocations. . . . .	22
1.3	Constructions (a) de Wulff, (b) de Wulff-Kaichev . . . . .	23
1.4	Diagramme schématique des différents processus et énergies caractéristiques de la nucléation et la croissance sur des surfaces. . . . .	25
1.5	Représentation schématique de la structure cristallographique d'une surface (110) d'un système cubique centré. . . . .	28
1.6	(a) Schéma de principe du DLP et détail des trois processus se succédant dans le DLP : (1) interaction du laser avec la cible entraînant l'ablation de matériau, (2) interaction du laser avec la matière évaporée menant à la formation d'un plasma partiel, (3) expansion du plasma partiel. . . . .	31
1.7	(a) Schéma de l'ensemble ultra-vide utilisé pour l'élaboration (DLP), et la caractérisation (RHEED, STM, et spectroscopie Auger) des échantillons. (b) Dessins du Molybloc et d'une plaquette STM utilisés comme support des substrats de saphir. Les pièces ont été ajourées pour permettre le chauffage du substrat directement par absorption de la puissance rayonnée par le four. . . . .	35
1.8	(a) Structure atomique d'une surface de graphite. (b) Image STM d'une surface de graphite en mode hauteur constante ( $2.5 \times 2.5 \text{ nm}$ , $V_{\text{gap}} = +0.1 \text{ V}$ ) (c) Image STM d'une surface de graphite en mode hauteur constante ( $1.5 \times 1.5 \text{ nm}$ ). La polarisation de l'échantillon a été inversée deux fois au cours du balayage, ce qui permet de visualiser le décalage d'une demi-maille entre les atomes présentant un état vide ou occupé. . . . .	39

1.9	Schéma de principe de la spectroscopie tunnel dans l'approximation d'une densité d'état de pointe constante. . . . .	40
1.10	Image STM 500nm × 500nm de la couche tampon de Mo(110)/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (11 $\bar{2}$ 0) obtenue en suivant la méthode optimisée décrite dans le texte et dans [Fruchart98d]. Encart, 100nm × 100nm de la couche tampon avant le recuit à 1100K. . . . .	43
1.11	Image AFM 10 <sup>4</sup> nm × 10 <sup>4</sup> nm de $\Theta = 5$ nm de Mo déposé sur Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (11 $\bar{2}$ 0) à 500K et recuit à $T_s > 1100$ K. Les tranchées font $\simeq 5$ nm de profondeur et sont alignées parallèlement à [001]. Entre les tranchées, la couche est atomiquement plane comme observée par STM. Les îlots que l'on voit sur cette image correspondent à un dépôt de Fe de $\Theta \simeq 0.3$ nm sur la couche tampon de Mo. . . . .	43
2.1	Images STM de 500nm x 500nm représentant la croissance de Fe sur Mo(110) dans le régime submonocouche. La température du substrat est 650K et la vitesse de dépôt 0.5Å/min. Les taux de couverture ont été déterminés à partir des images STM en calculant le volume des îlots. Sur les trois premières images, les flèches soulignent la présence de protubérances de Fe sur le bord inférieur des marches de Mo. . . . .	46
2.2	Images STM de dépôts de Fe sur Mo(110) pour un taux de couverture $\Theta \simeq 0.1$ MC. Les températures de dépôt et les tailles des images sont données en encart. . . . .	47
2.3	Données expérimentales (a) de la densité de nucléation $N_x$ et (b) de la distance moyenne entre îlots $\ell$ en fonction de l'inverse de la température (représentations d'Arrhenius). Les droites correspondent aux régressions linéaires dans les deux régimes de température. Les étoiles correspondent aux données de la littérature pour les systèmes Fe/Mo(110) et Fe/W(110). (c) Évolution de $N_x$ par rapport à $\ell$ . . . . .	49
2.4	Diagramme représentant schématiquement les configurations stables de noyaux pour différentes tailles critiques $i = 1$ à 4. . . . .	50
2.5	Images STM présentant la croissance de Fe à (650K, 0.5Å/min), après la complétion du premier plan atomique, pour $\Theta \approx 1.1$ MC (a), $\Theta \approx 1.4$ MC (b). (c) Image STM d'un îlot biseauté dont la hauteur est ajustée au dessus de la couche de mouillage de 2HA à 3HA au passage d'une marche atomique et présente ainsi un sommet plat. . . . .	54
2.6	(a) Image AFM 4000nm × 4000nm de Fe/Mo(110) ( $\Theta = 0.35$ nm, $T_s = 700$ K). La direction des marches atomiques (hauteur 2Å, visibles sur la figure) est proche de la direction [001]. (b) Quantité de matière par unité de surface des îlots compacts (■) et des îlots biseautés de $\approx 1$ nm de haut (⊖). Les volumes ont été estimés à partir des images AFM et ne tiennent pas compte de possibles effets de pointe . . . . .	55

2.7	(a) Variation de $d_{biseaux}$ ( $\square$ ), $\bar{S}_{biseaux}$ ( $\triangle$ ) et (b) variation de $S\%_{biseaux}$ ( $\bullet$ ) en fonction de $\Theta$ pour $T_s = 700K$ . $N_x$ , $\bar{S}_{biseaux}$ ne sont pas pertinents au delà de 2nm car les îlots biseautés coalescent. (c) Variation des mêmes quantités et de la hauteur ( $\nabla$ ) des îlots biseautés en fonction de $T_s$ pour $\Theta \approx 1nm$ . . . . .	56
2.8	Images STM d'îlots biseautés (a) (550nm $\times$ 550nm) et (b) (550nm $\times$ 320nm) sur un autre îlot. . . . .	57
2.9	Image AFM d'une assemblée d'îlots de Fe épitaxiés sur Mo(110) obtenus à 700K pour $\Theta = 8nm$ (a) et distributions de la longueur $L$ , la largeur $w$ et la hauteur $h$ des îlots obtenus par analyse statistique de l'image AFM. . . . .	59
2.10	Image AFM d'un îlot typique obtenu à 800K pour $\Theta = 8nm$ . Les trois sections perpendiculaires aux facettes ( $//[1\bar{1}0]$ (a) et $[1\bar{1}2]$ (b)) et le long de l'arête à la pointe de l'îlot (c), sont inclinées de $43^\circ$ , $60^\circ$ et $56^\circ$ respectivement ce qui correspond aux plans cristallographiques $\{010\}$ , $\{101\}$ et à une rangée $\langle 111 \rangle$ du fer bcc. (angles théoriques : $45^\circ$ , $60^\circ$ et $55^\circ$ ). . . . .	60
2.11	Clichés de diffraction RHEED sur des îlots auto-assemblés de Fe/Mo(110) obtenus à 700K pour $\Theta = 8nm$ selon trois azimuts : $[001]$ (a), $[1\bar{1}0]$ (b), et $[1\bar{1}1]$ (c). Les clichés sont décalés de quelques degrés par rapport à la direction exacte de l'azimut de manière à mettre en évidence les différentes catégories de raies. . . . .	61
2.12	Schéma de la morphologie typique d'un îlot compact auto-assemblé de Fe/Mo(110), schéma obtenu à partir de l'analyse combinée des images AFM et des clichés de diffraction RHEED. . . . .	62
2.13	(a) Image AFM d'une assemblée d'îlots de Fe épitaxiés sur Mo(110) obtenus à 700K pour $\Theta = 0.4nm$ . La direction des marches que l'on voit sur l'image AFM par rapport à la direction $[001]$ est indiquée par le trait pointillé. Clichés RHEED obtenus sur le même échantillon avec un léger décalage en angle par rapport aux azimut $[001]$ , $[1\bar{1}0]$ et $[1\bar{1}1]$ , de façon à mettre en évidence les différentes catégories de raies. . . . .	63
2.14	(a-b) Variations des dimensions, rapports d'aspect et de la densité en fonction de $\Theta$ à $T_s = 700K$ et (b-c) variations de la densité et des rapports d'aspect en fonction de $T_s$ pour $\Theta > 2nm$ , déterminées à partir de l'analyse d'images AFM. . . . .	64
2.15	(a) Carte en représentation polaire des angles d'incidences ( $\chi, \Phi$ ) pour lesquels il existe des plans de diffraction $\{110\}$ (figure de pôles pour $2\theta = 44.552$ ). Les angles $\chi, \Phi, \theta$ par rapport à la surface de l'échantillon sont définis schématiquement à droite de la figure de pôle. (b) Diagrammes de diffraction $\theta/2\theta$ mesurés suivant différentes incidences correspondant aux plans de diffraction : (b.1) (110) et (101), (b.2) (020) et (200), (b.3) (112) et $(1\bar{1}2)$ . Nous rappelons également la symétrie du cristal de Fe par rapport à la surface (110) d'épitaxie. . . . .	66

- 2.16 Diagrammes de diffraction calculés à partir des équations 2.14 et 2.13 et en considérant : - deux types d'îlots A et B, les premiers relaxés avec le paramètre du fer massif et les autres, 3 fois moins volumineux, présentant une déformation isotrope de +0.5%, - avec  $\lambda = 1.5418\text{\AA}$ . (a) En incidence normale, pic de diffraction de plans Fe(110) pour des longueurs de cohérence correspondant à  $N_3 = 3$  (tirets),  $N_3 = 50$  (ligne continue) et  $N_3 = 100$  (pointillés). (b) En incidence normale avec  $N_3^A = 200$  et  $N_3^B = 3$  correspondant aux valeurs expérimentales (c) Avec une incidence définie par ( $\chi = 54.74^\circ$ ,  $\Phi = 35.26^\circ$ ) correspondant aux plans Fe(101) des longueurs de cohérence suivant Fe[110] identiques à b, et qui ont été réduites à  $N_i = 200$  dans le plan pour rendre lisible la figure. . . . . 70
- 2.17 Schéma représentant la géométrie des îlots considérée pour le calcul de l'énergie de surface/interface. La longueur  $L$ , la largeur  $w$  et la hauteur  $h$  sont les paramètres du modèle. . . . . 74
- 2.18 (a1-c1) Polyèdres de Wulff et (a2-c2) polyèdres de Wulff-Kaichev calculés pour Fe à partir des énergies de surface mentionnées dans le Tableau 2.3. (a) seules les facettes {110} et {100} sont prises en compte, (b) avec également les facettes {310} puis (c) {211}. Les polyèdres de Wulff-Kaichev ont été calculés pour  $\gamma_{\text{int}} = 0.6\text{J/m}^2$ . Il est également présenté une section des formes d'équilibre du cristal supporté pour les différents cas suivant (d) la longueur et la largeur (e) des îlots, c'est à dire suivant  $[1\bar{1}0]$  et  $[001]$ . (f) Rappel du principe de la construction du polyèdre de Wulff-Kaichev . . . . 78
- 2.19 Variation des rapports d'aspect  $r = L/w$  et  $\eta = h/w$  en fonction de  $\gamma_{\text{int}}$ . Trois cas sont présentés suivant le nombre de facettes prises en compte. Les valeurs expérimentales avec leurs distributions sont figurées par des rectangles. En encart, variation sur toute la gamme  $0 < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}} = 2.43\text{J/m}^2$ . . . . . 82
- 2.20 Nappe de l'énergie totale de surface/interface en fonction de  $r = L/w$  et  $\eta = h/w$ . Le calcul a été effectué en ne considérant que les facettes {110} et {100}. L'énergie d'interface est  $\gamma_{\text{int}} = 0.6 \pm 0.1\text{J/m}^2$ . Le minimum d'énergie correspond à  $E_{\text{tot}}/V_0^{2/3} = 4.7\text{J/m}^2$  et la différence d'énergie entre les différentes lignes est  $0.2\text{J/m}^2$ . . . . . 84
- 3.1 Images STM (100nm x 100nm) de la croissance de Fe sur Mo(110) à 300K, pour des taux de couverture allant jusqu'à 4.5MC. (obtenues par O. Fruchart) 92
- 3.2 Images STM (500nm x 500nm) de la croissance de Fe/Mo(110) à 400K, pour différents taux de couverture ( $\Theta < 4\text{MC}$ ). La première image correspond à la couche tampon de Mo sans dépôt de Fe. . . . . 93

3.3	Images STM et AFM d'un dépôt de Fe à 300K recuit à haute température ( $T_{\text{rec}} \geq 600K$ ) pour différents taux de couverture. Pour chaque cas, à gauche est présentée une image STM de $950\text{nm} \times 950\text{nm}$ , et à droite une image AFM de $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$ , sauf pour (h) où sont présentées deux images AFM. . . . .	95
3.4	Spectres de diffraction de rayons X en incidence rasante sur une couche quasi-continue de Fe d'épaisseur $6HA$ correspondant à $\Theta \simeq 5MC$ déposée à 300K et recuite à 600K. (a) et (b) correspondent aux spectres de diffraction $\theta/2\theta$ pour Fe( $1\bar{1}0$ ) et Fe(002) respectivement. (c) présente le résultat d'un balayage en $\Phi$ pour $\theta_{\text{Bragg}} = 22.33^\circ$ . Des spectres en géométrie $\theta/2\theta$ ont ensuite été réalisés pour déterminer les positions de chaque pic, qui ont été reportées sur la figure. . . . .	96
3.5	(a) Image STM ( $950\text{nm} \times 950\text{nm}$ ) de $\simeq 3MC$ de Fe déposé à 400K et recuit pendant 1h à 700K. (b) Image STM de la surface de Mo(110) avant le dépôt de Fe (même échelle). (c) Section suivant le trait indiqué sur la figure-a avec un schéma présentant la morphologie de l'échantillon après recuit. . . . .	100
3.6	Images AFM $10^4\text{nm} \times 10^4\text{nm}$ de bandes de Fe présentant des orientations et des espacements différents après un dépôt sur des substrats de $\text{Al}_2\text{O}_3$ de désorientations de coupe différentes. L'espacement des marches, $w_t$ , est donné sur chaque figure. Sur l'image de droite, les îlots observés en plus des bandes de Fe sont dus à un re-dépôt de $0.25MC$ de Fe à 700K, après une première étape de dépôt à 400K et recuit à 700K ( $\Theta \simeq 3MC$ ). . . . .	102
3.7	Images AFM $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$ de bandes de Fe avec des largeurs différentes dépendant du taux de couverture ( $T_s = 400K$ , $T_{\text{rec}} = 700K$ ). . . . .	102
3.8	Images AFM $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$ présentant l'effet d'un re-dépôt à 700K (a) et à 550K (b), après une première étape de formation de bandes de Fe ( $T_s = 400K$ et $T_{\text{rec}} = 700K$ ). . . . .	103
3.9	(a) Images STM ( $500\text{nm} \times 500\text{nm}$ ) présentant les premiers stades de la croissance de Fe sur Mo(110) à 500K, et (b) images AFM ( $1000\text{nm} \times 1000\text{nm}$ ) présentant la suite du dépôt au delà de $\Theta > 2MC$ . . . . .	104
3.10	Images AFM $5000\text{nm} \times 5000\text{nm}$ d'un dépôt de Fe/Mo(110) à 500K pour $\Theta = 5MC$ et $\Theta = 10MC$ . Au centre, zoom sur un îlot compact facetté de taille $160\text{nm} \times 100\text{nm} \times 9\text{nm}$ , et sur un îlot plat allongé de taille $740\text{nm} \times 130\text{nm} \times 5\text{nm}$ . L'îlot plat est allongé le long des marches de Mo, ici parallèles à $[001]$ , et présente un bord assez rectiligne qui pourrait correspondre à la position de la marche. . . . .	105
3.11	Clichés de diffraction RHEED pour dépôt $\Theta = 10MC$ à 500K suivant les trois azimuts $[001]$ , $[1\bar{1}0]$ et $[1\bar{1}1]$ . Les clichés sont décalés de quelques degrés par rapport à l'angle azimutal pour mettre en évidence les différentes catégories de raies. . . . .	106

3.12	Images AFM (5000nm × 5000nm) d'un dépôt de Fe/Mo(110) à 500K pour $\Theta = 2.5MC$ , $\Theta = 5MC$ et $\Theta = 10MC$ recuit à 700K pendant 1 heure. Les îlots sont allongés le long des marches de Mo qui sont ici environ parallèles à [001]. . . . .	107
3.13	Schéma récapitulatif des modes de croissance de Fe/Mo(110). . . . .	109
4.1	Configuration de base de la construction de Van den Berg pour (a) un ellipsoïde, et (c) un hexagone allongé dont la forme reproduit la base des îlots compacts présentés dans le CHAP. 2. (b) et (d) correspondent aux configurations composites de l'ellipsoïde et de l'hexagone allongé subdivisés virtuellement selon la ligne pointillée. . . . .	120
4.2	(a) Variations de la température de transition supra/normal $T_C$ en fonction de l'épaisseur $t_{Nb}$ de la couche de Nb, et pour différentes configurations de dépôt : lorsque le Nb est déposé directement sur Mo(110), lorsqu'il est déposé directement sur un dépôt de $\Theta = 1nm$ de Fe à 300K (BT) ou à 700K (HT), en intercalant une couche de Mo(2nm)/Al(2nm)/Mo(2nm) entre Nb et Fe, ou en déposant sur Nb une couche protectrice de 2nm de Si. (b) Variation de $T_C$ en fonction de l'épaisseur de couche tampon de Mo intercalée entre le dépôt à 700K de 1nm de Fe, et le dépôt de 10nm de Nb.	127
4.3	Représentation schématique de la succession de couches minces superposées pour la fabrication des micro-SQUID avant (gauche) et après (droite) l'étape de gravure, (a) sur un îlot de Fe, (b) au niveau d'une ligne de Nb constituant le micro-SQUID. . . . .	127
5.1	Cycles d'hystérésis mesurés par VSM à 300K avec le champ appliqué alternativement suivant les directions [001](■), [1 $\bar{1}$ 0] (□) et [110] (×). En encart, images AFM de $20\mu m \times 20\mu m$ et $1.5\mu m \times 1.5\mu m$ rappelant les caractéristiques morphologiques de l'échantillon ( $\Theta \simeq 4nm$ ). . . . .	130
5.2	Formes approchées des îlots compacts : (a)ellipsoïde, (b)parallélépipède rectangle, (c)"hexaplot", utilisées dans les estimations des énergies de champ démagnétisant suivant les directions $L//[001]$ , $w//[1\bar{1}0]$ et $h//[110]$ . . . . .	131
5.3	Cycles d'hystérésis obtenus par VSM à 300K, avec champ appliqué dans le plan de l'échantillon suivant les directions (a) [001] et (b) [1 $\bar{1}$ 0]. Les courbes représentées par des carrés ouverts (□) correspondent à la différence de l'aimantation pour un champ croissant et un champ décroissant, qui illustre comme schématisé en (c) la présence d'hystérésis magnétique. . . . .	134
5.4	Cycles d'hystérésis (VSM, 300K) avec champ appliqué dans le plan de l'échantillon suivant les directions (a) [001] et (b) [1 $\bar{1}$ 0], pour un échantillon dont les dimensions moyennes sont $550nm \times 350nm \times 65nm$ . En encart, différence entre l'aimantation mesurée en champ croissant et en champ décroissant pour [001]. . . . .	135

5.5 (a) Image AFM ( $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$ ) présentant la morphologie des îlots. La taille moyenne des îlots est  $1000\text{nm} \times 450\text{nm} \times 120\text{nm}$ . (b,d-e) Images MFM sur trois îlots présentant la même histoire magnétique qui met en évidence deux types de configurations en domaine. (c,f) schémas des configurations en domaines interprétées à partir des images MFM. . . . . 136

5.6 (a) Image AFM ( $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$ ) présentant la morphologie des îlots. La taille moyenne des îlots est  $550\text{nm} \times 350\text{nm} \times 65\text{nm}$ . (b,d-e) Images MFM sur trois îlots ayant été simultanément saturés suivant  $[001]$ , qui mettent en évidence deux types de configurations en domaine : une configuration de type Bloch (b-c) et une configuration de type diamant (d-f). (c,f) Schémas des configurations en domaines interprétées à partir des images MFM. . . . 137

5.7 Représentations schématiques de l'hexaplot et notations utilisées pour décrire les structures magnétiques :  $C_i^\pm$  et  $L_i$  définissent les côtés de l'hexaplot,  $P^\pm$  et  $A_i^\pm$  se rapportent aux coins. Les indices 1 et 2 correspondent à  $y > 0$  et à  $y < 0$  respectivement, et les exposants + et -, à  $x > 0$  et à  $x < 0$  respectivement. . . . . 138

5.8 (a) Cycles d'hystérésis simulés (carrés pleins : champ décroissant, ronds vides : champ croissant), les triangles gris correspondent aux mesures par VSM à 300K sur une assemblée de particules (cf. Figure 5.4)). (b) Comparaison des hystérésis (carrés pleins : simulation, ligne grise : interpolation sur les mesures VSM). . . . . 139

5.9 Présentation de la configuration magnétique d'équilibre à la rémanence obtenue par simulation numérique lors d'un retour progressif en champ depuis la saturation à  $H_{\text{app.}} = 1T$ . (a) Coupe au niveau du plan médian de l'hexaplot et comparaison avec une structure d'équilibre composite prévue par le modèle de Van den Berg. (b) Configurations magnétiques au sommet et à la base de l'hexaplot et coupes entre  $P^-$  et  $P^+$ , et le long du côté  $L_2$ . (c) Résultat d'une simulation sur une bande ultra-fine de Fe de hauteur 60nm, pour déterminer la configuration d'équilibre entre deux domaines orientés tête-bêche. Le pas de maillage est de 5nm dans la longueur de la bande, et 2.5nm dans la largeur et l'épaisseur. . . . . 140

5.10 Images "MFM" simulées sur la configuration diamant, correspondant aux cartes de dérivées du champ de fuite, (a)  $\frac{dH}{dz}(z)$  et (b)  $\frac{d^2H}{dz^2}(z)$ , à une hauteur de vol constante de 30nm au dessus de l'hexaplot. . . . . 142

5.11 Configurations micromagnétiques dans le plan médian de l'hexaplot calculées pour différent champs appliqués permettant de suivre l'évolution des configurations micromagnétiques lors d'un retour en champ depuis la saturation ( $H_{\text{app.}} = 1T$ ). Les configurations sont les configurations d'équilibre, excepté pour deux configurations qui correspondent à deux étapes de l'évolution pseudodynamique à 0.06T. . . . . 143

5.12	Configuration statique d'équilibre obtenue par simulation numérique en laissant relaxer à champ nul une structure en domaines initiale imitant la structure Bloch. (a) Coupe au niveau du plan médian de l'hexaplot et comparaison avec la structure d'équilibre de base prévue par le modèle de Van den Berg. (b) Section verticale au centre de l'hexaplot montrant la structure de la paroi de vortex. . . . .	146
5.13	Carte de $d^2Hz/dz^2$ calculée à partir de la configuration micromagnétique de la Figure 5.12 avec une hauteur de vol au dessus de l'îlot de 30nm à comparer avec l'image MFM de la Figure 5.6b. . . . .	147
5.14	Cycle d'hystérésis simulé pour l'application d'un tilt de $+0.1^\circ$ pour $x > 0$ et de $-0.1^\circ$ pour $x < 0$ (■), comparés au cycle d'hystérésis obtenu dans le cas de l'application d'un tilt de $+0.1^\circ$ constant (○). La courbe avec les triangles gris rappelle le cycle d'hystérésis obtenu par VSM sur une assemblée de particules de dimensions équivalentes . . . . .	149
5.15	Evolution des configurations micromagnétiques dans le plan médian de l'hexaplot calculées pour des champs appliqués décroissants, avec une désorientation du champ par rapport à l'axe $x//[001]$ de $+0.1^\circ$ pour $x > 0$ et de $-0.1^\circ$ pour $x < 0$ . Les images pour lesquelles sont indiquées un numéro d'itérations montrent l'évolution pseudodynamique à 0.06T au cours de laquelle il se forme une paroi de vortex. . . . .	152
5.16	Résumé des différentes possibilités de nucléation en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué autour de [001]. La flèche courbée indique le lieu de la zone de nucléation et sa vorticité. . . . .	153
5.17	Image AFM ( $2\mu m \times 2\mu m$ ) du microsquid et schéma de la morphologie de l'îlot compact de Fe étudié. On rappelle également les notations qui sont utilisées pour décrire les processus de nucléation (voir aussi Figure 5.7). . . . .	154
5.18	Cycles de flux mesurés par micro-SQUID pour trois angles du champ appliqué $\varphi = 6^\circ, 50^\circ, 90^\circ$ . Carte des champs de saut en fonction de l'angle $\varphi$ et de l'amplitude du champ appliqué. Les mesures ont pratiquement été réalisées entre $\varphi = 0$ et $\varphi = 180$ , (■) correspond aux champs croissants et (□) correspond aux champs décroissants. . . . .	155
5.19	Mesure de la dépendance des champs de saut de flux en fonction de la direction et de l'amplitude du champ appliqué, (a) pour différentes températures $T \approx 40mK$ (carrés pleins) et $T \simeq 2K$ (ronds ouverts) et (b) à $T \approx 40mK$ pour différents champs transverses $\mu_0 H_z = 0T$ (carrés noirs), $\mu_0 H_z = -0.02T$ (ronds pleins), $\mu_0 H_z = 0.02T$ (ronds ouverts). . . . .	157
5.20	Dépendance angulaire des champs de nucléation (a) et d'annihilation (b) de la particule de Fe étudiée. (c) Cycles d'hystérésis reconstitués pour 3 angles $\varphi = 6^\circ, \varphi = 50^\circ$ et $\varphi = 90^\circ$ (traits pleins), comparés aux résultats des simulations micromagnétiques (□) (section 5.3.2). . . . .	158

5.21	Dépendance angulaire des champs de nucléation (champs positifs) et d'annihilation (champs négatifs) déterminés par mesures microsquid, comparés à la dépendance angulaire du champ dipolaire, calculé pour une aimantation uniforme. . . . .	159
5.22	Comparaison des cycles d'aimantation issus des simulations avec un pas de maillage vertical de 5nm (formes pleines) et 15nm (formes ouvertes), pour trois angles du champ appliqué : $\varphi = 0^\circ$ (triangles), $\varphi = -50^\circ$ (carrés) et $\varphi = 50^\circ$ (ronds). . . . .	161
5.23	Comparaison des champs de saut correspondant à la nucléation déterminé à partir des simulations micromagnétiques (*), et obtenus par mesures de micro-SQUID (■). . . . .	162
5.24	Configurations magnétiques dans le plan médian de l'hexaplot ( $z = h/2$ ) avant et après le premier saut de nucléation pour $\varphi = -40^\circ$ et $\varphi = -50^\circ$ . Ces simulations ont été réalisées avec un pas de maillage cubique de 5nm de côté. . . . .	163
5.25	Configuration magnétique dans le plan médian de l'hexaplot dissymétrique ( $z = h/2$ ), obtenue à la rémanence après saturation suivant [001]. La simulation a été réalisée avec un pas de maillage cubique de 5nm de côté. . . . .	164
6.1	(a) Cycles d'hystérésis (VSM à 300K, $H_{app.} // [001]$ ) pour des assemblées d'îlots compacts de différentes dimensions moyennes. (b) Evolution de l'aimantation rémanente (■) et du champ coercitif (o) en fonction de la longueur moyenne $\bar{L}$ des assemblées d'îlots. . . . .	166
6.2	(a) Cycles d'hystérésis à 300K pour une assemblée d'îlots de dimensions moyennes $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$ , avec le champ appliqué suivant [001] (■) et suivant $[1\bar{1}0]$ (o). (b) Evolution du champ coercitif en fonction de l'angle planaire du champ appliqué par rapport à la direction [001]. Les carrés pleins correspondent aux points expérimentaux et les carrés vides sont leur symétrique par rapport à $90^\circ$ . . . . .	167
6.3	(a) Cycles d'hystérésis suivant l'axe de facile aimantation, Fe[001], d'îlots de dimensions moyennes $430\text{nm} \times 300\text{nm} \times 35\text{nm}$ ( $\Theta \simeq 1.2\text{nm}$ ) pour différentes températures comprises entre 10K et 300K. (b) Evolution du champ coercitif avec la température (c) Hystérésis (M(H) en champ décroissant - M(H) en champ croissant) associé aux cycles présentés Fig.a. (d) Evolution de l'aimantation à saturation en fonction de la température de mesure pour ce même échantillon (■), et pour deux autres échantillons correspondant à des taux de couverture de $\Theta \simeq 2.4\text{nm}$ ( $\Delta$ ) et $\Theta \simeq 4.8\text{nm}$ ( $\bullet$ ). La ligne pointillée correspond à l'évolution de $M_s$ du fer massif. En insert, $M_s$ en fonction de l'hystérésis magnétique (intégrale des courbes de la Figure c). . . . .	168

- 6.4 Représentations de cycles d'hystérésis typiques et de leurs contributions réversible (ligne claire) et irréversible (ligne foncée), déterminées pour le demi cycle en champ décroissant. (a) cycle correspondant à un retournement uniquement irréversible : saut d'aimantation d'amplitude  $\Delta M = 2$  pour  $H_{\text{app.}} = H_r < 0$ . (b) cycle d'une particule pour laquelle une variation réversible de l'aimantation se produit avant et après le saut irréversible d'aimantation. (c) cycle d'une particule multi-domaines : la nucléation intervient pour  $H_{\text{nuc}} > 0$ , elle est suivie par une étape réversible correspondant au déplacement de la paroi jusqu'à l'annihilation pour  $H_{\text{ann}} < 0$ . (d) cycle associé à un mode de retournement uniquement réversible : rotation continue de l'aimantation suivant un axe difficile par exemple. . . . . 170
- 6.5 (a) Construction du cycle d'hystérésis d'une assemblée de particules de cycle moyen carré (cf. encart) présentant une distribution de champ de sauts irréversibles  $\rho_{\text{irrev}}$ . (b) Construction du cycle d'hystérésis d'une assemblée de particules présentant un cycle moyen avec une contribution réversible dépendante de  $H_c$  (cf. encart) avec une distribution de champ de retournement  $\rho_{\text{irrev}}$ . . . . . 172
- 6.6 (a) Cycle d'hystérésis d'une assemblée d'îlots de dimensions moyennes  $310\text{nm} \times 160\text{nm} \times 30\text{nm}$  avec un champ appliqué suivant  $[001]$  (■) et  $[1\bar{1}0]$  (○). (b) schéma de détermination de  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  avec origine de cycles mineurs. (b) Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) de l'échantillon. (c) Schéma de principe utilisé pour déterminer  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H_0)$  à partir des mesures VSM. . . . . 173
- 6.7 (a)  $\chi_{\text{rev}}$  déterminé à 10K par mesure de susceptibilité réversible avec un susceptomètre et déduites de mesures de cycles mineurs pour l'échantillon de la Figure 6.6. Le champ est appliqué suivant l'axe facile : Fe $[001]$ . (b) Contributions réversible et irréversible à la variation d'aimantation et variation d'aimantation totale de cette assemblée d'îlots. . . . . 173
- 6.8 Comparaison entre les cycles mineurs mesurés à 10K par VSM (□) et les cycles mineurs simulés à partir de la séparation des contributions réversible et irréversible (traits pleins). . . . . 175
- 6.9 (a) Cycles d'hystérésis mesurés à 300K par VSM en appliquant le champ successivement suivant les directions Fe $[001]$ (■) et Fe $[1\bar{1}0]$  (○). (b) Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) rappelant la morphologie de l'échantillon. . . . . 176
- 6.10 (a) Contributions réversible ( $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$ ) et irréversible ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$ ) à la variation d'aimantation en champ décroissant et variation d'aimantation totale ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$ ) de l'assemblée d'îlots plats allongés de la Figure 6.9b.  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H)$  est une interpolation à partir des points expérimentaux mesurés à l'origine de cycles mineurs (⊗). (b) Cycles mineurs mesurés à 300K suivant l'axe facile Fe $[001]$  (□), et cycles simulés à partir de  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  de la Fig.a. 177

- 6.11 (a) Cycles d'hystérésis mesurés à 300K par VSM en appliquant le champ successivement suivant les directions Fe[001](■) et Fe[1 $\bar{1}$ 0] (○). (b) Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) rappelant la morphologie de l'échantillon. . . . . 178
- 6.12 (a) Contributions réversible ( $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$ ) et irréversible ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$ ) à la variation d'aimantation en champ décroissant et variation d'aimantation totale ( $(\frac{dM}{dH})_{\text{tot}}^{\text{ass}}$ ) de l'assemblée d'îlots plats allongés de la Figure 6.9b.  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}(H)$  est une interpolation à partir des points expérimentaux mesurés à l'origine de cycles mineurs ( $\otimes$ ). (b) Cycles mineurs mesurés à 300K suivant l'axe facile Fe[001] ( $\square$ ), et cycles simulés à partir de  $(\frac{dM}{dH})_{\text{irrev}}^{\text{ass}}$  et  $\chi_{\text{rev}}^{\text{ass}}$  de la Fig.a. 179



# Index des notations

## Notations relatives à la croissance :

$\bar{x}$	Valeur moyenne de la quantité 'x'
$a_D, a_S, a_x$	Paramètres de maille du dépôt D, du substrat S, ou d'un matériau 'x'
<i>AFM</i>	Microscope à force atomique
<i>AES</i>	Spectroscopie d'électrons Auger
d	Densité d'îlots : nombre d'îlots par $\mu\text{m}^2$
<i>D</i>	Vitesse de diffusion sur une surface atomique, $D = D_0 \exp(-\frac{E_d}{k_B T})$
$e_{\text{met}}$	Épaisseur de métastabilité de la couche de Fe/Mo(110)
$E_d$	Barrière d'énergie de diffusion
$E_i$	Énergie de liaison d'îlots de i atomes
$E_{\text{el}}$	Énergie élastique
$E_S$	Énergie de surface/interface, $E_S = \sum_{S_i} \gamma_{S_i} \cdot S_i + \gamma_{\text{int}} S_{\text{int}}$
$E_{\text{tot}}$	Énergie totale du système (structure : $E_{\text{tot}} = \gamma_S + E_{\text{el}}$ )
$\epsilon_{//}, \epsilon_{\perp}$	Déformations élastiques dans le plan et hors du plan
<i>f</i>	Différence de paramètre de maille, $f = \frac{a_D - a_S}{a_S}$
<i>F</i>	Flux incident d'atomes
$\gamma, \gamma_{\text{int}}, \gamma_{\{\text{xxx}\}}$	Densité d'énergie de surface, d'interface ou d'une surface {xxx}
<i>h</i>	Hauteur des îlots
<i>HA</i>	Hauteur d'un plan atomique
$\ell$	Longueur caractéristique de diffusion (cf. Sect.2.1.1)
<i>L</i>	Longueur des îlots
<i>LEED</i>	Diffraction d'électrons de basse énergie
<i>MBE</i>	Epitaxie par jet moléculaire
<i>MC</i>	Monocouche (cf. Sect.1.1.1)
$N_x$	Densité de noyaux stables (régime sub-monocouche)
$\eta$	Rapport d'aspect vertical des îlots compacts, $\eta = \frac{h}{w}$
<i>PLD</i>	Dépôt Laser Pulsé
<i>r</i>	Rapport d'aspect latéral des îlots compacts, $r = \frac{L}{w}$
<i>RHEED</i>	Diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante
$S_{\text{ilot}}$	Surface sur laquelle repose un îlot

$S\%_{\text{îlots}}$	Proportion de la surface recouverte par les îlots
$STM$	Microscope à effet tunnel
$T_{amb.}$	Température ambiante
$T_s$	Température du substrat pendant un dépôt
$T_{rec}$	Température de recuit
$T_{red}$	Température du substrat au cours d'un re-dépôt
$\Theta$	Taux de couverture (cf. Sect.1.1.1)
$TDS$	Spectroscopie par désorption thermique
$V_0$	Volume des îlots
$w$	Largeur des îlots

### Notations relatives au magnétisme :

$A_{ech}$	Constante d'échange
$\left(\frac{dM}{dH}\right)^{ass}$	Variation totale de l'aimantation en fonction du champ
$\left(\frac{dM}{dH}\right)^{part,ass}$	Variation irréversible de l'aimantation pour une (part.) ou une assemblée (ass.) de particules
$E_a$	Energie d'anisotropie
$E_d$	Energie magnétostatique, dipolaire ou de champ démagnétisant
$E_{ech}$	Energie d'échange
$E_{mc}$	Energie d'anisotropie magnétocristalline
$E_{me}$	Energie magnétoélastique
$E_Z$	Energie Zeeman
$H_a$	Champ d'anisotropie
$H_{ann}$	Champ d'annihilation : expulsion d'un vortex ou d'une paroi
$H_{app.}$	Champ magnétique appliqué
$H_c$	Champ coercitif
$H_{dem}$	Champ dipolaire ou démagnétisant
$H_{nuc}$	Champ de nucléation : nucléation d'un vortex ou d'une paroi
$H_r$	Champ de rebroussement d'un cycle mineur
$H_s$	Champ de saut d'aimantation
$H_{sat.}$	Champ de saturation
$H_z$	Composante hors du plan du champ démagnétisant
$\kappa$	Constante d'anisotropie effective
$K_d$	Constante d'énergie dipolaire, $K_d = \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$
$K_1$	Constante d'anisotropie uniaxiale
$\ell_{ech}$	Longueur d'échange, $\ell_{ech} = \pi \sqrt{\frac{A_{ech}}{K_d}}$

$\ell_{Bloch}$	Largeur de paroi, $\ell_{Bloch} = \pi \sqrt{\frac{A_{ech}}{\kappa}}$
$\vec{M}$	Vecteur d'aimantation
$\vec{m}$	Vecteur d'aimantation normalisé à $M_s$ , $\vec{m} = \vec{M} M_s$
$M_r$	Aimantation rémanente
$M_s$	Aimantation à saturation
<i>MF</i> <i>M</i>	Microscope à Force Magnétique
$\overline{N}_d, N_x, N_y, N_z$	Tenseur et coefficients de champ démagnétisant
$Q$	Facteur de qualité, $Q = \frac{\kappa}{K_d}$
$\rho, \sigma$	Charges magnétiques de volume, de surface
<i>SQUID</i>	Single Quantum Unit Interference Device
<i>VSM</i>	Magnétomètre à échantillon vibrant
$\Phi$	Flux magnétique mesuré par le micro-SQUID
$\chi_{rev}^{part,ass}$	Susceptibilité réversible pour une ou une assemblée de particules





**Résumé :** L'objectif de cette thèse était l'élaboration par croissance auto-assemblée et l'étude des processus de retournement d'aimantation de particules magnétiques modèles de Fer épitaxiées sur une surface (110) de Molybdène.

Une étude systématique de la croissance de Fe sur Mo(110)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0) sous ultra-vide par Dépôt Laser Pulsé est présentée. Cette étude a permis d'affiner les connaissances de la littérature concernant la croissance de couches continues grâce à des observations STM in-situ, et d'étudier en détail les différentes méthodes permettant d'auto-assembler des nanostructures (plots, bandes). A haute température ( $T_s > 600K$ ), la croissance de Fe sur Mo(110) conduit à la formation d'îlots 3D compacts auto-assemblés qui, comme démontré par un calcul énergétique, présentent la forme facettée et les rapports d'aspect de cristaux de Fe à l'équilibre thermodynamique. A température modérée ( $300K < T_s < 600K$ ), la croissance de Fe sur Mo(110) est affectée par des limitations cinétiques. Un dépôt à 500K, ou le recuit d'une couche continue déposée à 300K ou à 400K, conduit à la formation de bandes nanométriques de Fe auto-organisées le long des marches de la surface faiblement vicinale de Mo(110).

Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié particulièrement les propriétés magnétiques d'îlots 3D compacts de taille sub-micronique. En combinant des mesures macroscopiques, des mesures sur des particules individuelles, et des simulations micromagnétiques, nous arrivons à décrire de façon détaillée la configuration en domaines et les processus de retournement d'une particule individuelle en fonction de ses caractéristiques morphologiques et structurales. Par ailleurs, les propriétés magnétiques de particules qui présentent une rémanence non nulle (petits îlots compacts, bandes auto-organisées de Fer) ont été étudiées à partir des cycles d'hystérésis macroscopiques à l'aide d'une méthode de séparation des contributions réversible et irréversible à la variation d'aimantation.

**Mots clefs :** Epitaxie, Auto-assemblage, Auto-organisation, Nanostructures magnétiques, Domaine(s) magnétique(s), Micromagnétisme, Anisotropie magnétique.

---

GROWTH AND MAGNETIC PROPERTIES OF SELF-ASSEMBLED EPITAXIAL NANOSTRUCTURES :  
THE FE/MO(110) SYSTEM.

**Abstract :** The aim of the present thesis is the fabrication, using self-assembly technique, of Fe model nanoparticles on Mo(110) and the study of their magnetization reversal.

A systematic study of the growth of Fe on Mo(110)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11 $\bar{2}$ 0) under ultra high vacuum conditions is presented. The epitaxial technique is Pulsed Laser Deposition. This work provides new information about the growth of Fe thin films, and describes different methods to produce self-assembled/self-organized nanostructures (dots or stripes). Two distinct growth modes are observed as a function of the substrate temperature leading to the formation of two types of model particles : Above  $T_s > 600K$ , the growth of Fe/Mo(110) results in the formation of 3D compact self-assembled Fe islands. The faceted shape and constant aspect ratios are demonstrated to correspond to the equilibrium shape of an iron crystal. At moderated temperature ( $300K < T_s < 600K$ ), Fe growth differs because of kinetic limitations. Deposition at 500K, or annealing of continuous films grown at 300K or 400K, results in the formation of Fe nanostripes self-organized along the atomic steps of the slightly vicinal Mo(110) surface.

Within this work, the study of the magnetic properties mainly focuses on the magnetic domain configurations and on the reversal behavior of submicronic 3D compact Fe islands. Magnetic characterization of this model system was performed using simultaneously macroscopic techniques, single particle measurements (MFM and micro-SQUID) and micromagnetic simulations. This multi-technique approach has lead to a precise description of the magnetic domain configurations and on the reversal processes for one single particle, in correlation with its structure and shape which are precisely determined. The magnetic properties of the self-organized nanowires, which present a remanent state, have also been studied from macroscopic measurements by applying a method of separation of the irreversible and reversible contribution to magnetic variation.

**Keywords :** Epitaxial growth, Self-assembly, Self-organisation, Magnetic Nanostructures, Magnetic domain(s), Micromagnetism, Magnetic anisotropy.